

SÉRIE A, n° 3168

N° D'ORDRE :

4040

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

ANDRÉ LABERRIGUE

1^{re} THÈSE. — DIFFUSION DES ÉLECTRONS PAR L'AGITATION THERMIQUE DES ATOMES D'UN CRISTAL.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 12 mai 1958 devant la Commission d'examen.

MM. WYART..... *Président.*

LAVAL } *Examineurs.*
CURIEN..... }

PARIS

MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS

LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE

120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN

1959

SÉRIE A, N° 3168

N° D'ORDRE :

4040

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

ANDRÉ LABERRIGUE

1^{re} THÈSE. — DIFFUSION DES ÉLECTRONS PAR L'AGITATION THERMIQUE DES ATOMES D'UN CRISTAL.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 12 mai 1958 devant la Commission d'examen.

MM. WYART..... *Président.*

LAVAL } *Examineurs.*
CURIEN..... }



PARIS

MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS

LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE

120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN

1959

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Doyen J. PÉRÈS

PROFESSEURS

G. JULIA	T	Analyse supérieure et	QUENEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique.
FOCH	T	Algèbre supérieure.	GALLIEN	T	Embryologie.
PAUTHENIER	T	Mécanique physique et expérimentale.	EICHORN	T	Biologie végétale (P.C.B.)
DE BROGLIE	T	Électrotechnique générale	DE CUGNAC	T	Biologie végétale (P.C.B.)
PRENANT	T	Théories physiques.	M ^{lle} CAUCHOIS	T	Chimie physique.
GARNIER	T	Anatomie et Histologie comparées.	THÉLLIER	T	Physique du Globe.
PÉRÈS	T	Géométrie supérieure.	L'HÉRITIER	T	Génétique.
LAUGIER	T	Mécanique des fluides et applications.	GRIVET	T	Radioélectricité.
M. CURIE	T	Physiologie générale.	PONCIN	T	Mécanique des fluides.
BARRABÉ	T	Physique (S.P.C.N.).	DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des nombres.
G. DARMOIS	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.	QUELET	T	Chimie organique.
J. BOURCART	T	Calcul des probabilités et Physique mathématique.	CAGNIARD	T	Géophysique appliquée.
PLANTEFOL	T	Géographie physique et Géologie dynamique.	CHAMPETIER	T	Chimie macromoléculaire.
GRASSÉ	T	Botanique.	CUVILLIER	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.
PRÉVOST	T	Évolution des êtres organisés.	JUNG	T	Pétrographie.
BOULIGAND	T	Chimie organique.	TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique.
CHAUDRON	T	Application de l'Analyse à la Géométrie	WIEMANN	T	Chimie organique et structurale.
WYART	T	Chimie appliquée.	JACQUINOT	T	Spectroscopie et Physique céleste.
TEISSIER	T	Minéralogie.	VASSY	T	Physique de l'atmosphère.
MANGENOT	T	Zoologie.	DESTOUCHES	T	Théories physiques.
P. AUGER	T	Biologie végétale.	M. PRUVOST	T	Géologie.
MONNIER	T	Physique quantique et Relativité.	AMIEL	T	Chimie générale (P.C.B.)
PIVELEAU	T	Physiologie des fonctions.	HOCART	T	Minéralogie.
ROCARD	T	Paléontologie.	J.-P. MATHIEU	T	Physique (P.C.B.).
H. CARTAN	T	Physique (E.N.S.).	COUTEAUX	T	Biologie animale (P.C.B.)
LAFFITE	T	Mathématiques (E.N.S.).	MAY	T	Biologie animale (P.C.B.)
FAYARD	T	Chimie générale.	CHOQUET	T	Calcul diff. et intégral.
COULOMB	T	Mécanique générale.	FELDMANN	T	Biologie (P.C.B.).
M ^{lle} COUSIN	T	Physique du Globe.	GUINIER	T	Physique génér. (P.C.B.)
CHRÉTIEN	T	Biol. animale (S.P.C.N.).	JOST	T	Physiologie comparée.
P. DRACH	T	Chimie minérale.	FORTET	T	Calcul des probabilités
KASTLER	T	Zoologie.	SCHWARTZ	T	Méthodes mathématiques de la Physique.
EPHROSSI	T	Physique.	CHOUARD	T	Physiologie végétale.
WURMSER	T	Génétique.	MALAVARD	T	Aviation.
RIVIERE	T	Physico-chimique.	BRELOT	T	Calcul différentiel.
GAUTHIERET	T	Biol. (S.P.C.N.).	NORMANT	T	Chimie organ. (P.C.B.).
LUCAS	T	Géologie (S.P.C.N.).	BÉNARD	T	Chimie (P.C.B.).
A. THOMAS	T	Biologie végétale (P.C.B.)	BUVAT	T	Botanique (E.N.S.).
ARNULF	T	Recherches physiques.	DUCUÉ	T	Statistiques mathématiques.
M. MORAND	T	Biologie cellulaire.	GELOSO	T	Chimie (S.P.C.N.).
SOULET	T	Optique appliquée.	SOULAIAC	T	Psychophysiologie.
FORTIER	T	Enseignement de Phys.	ULRICH	T	Physiologie végétale.
DANJON	T	Physique.	MARÉCHAL	T	Optique théorique et appliquée.
LAPORTE	T	Mécanique expérimentale des fluides.	KIRRMANN	T	Théories chimiques.
JANET	T	Astronomie.	CHADEFAUD	T	Botanique.
PETIT	T	Physique générale et Radioactivité.	DESTIAU	T	Physique (M.P.C.).
		Mécanique analytique et Mécanique céleste.	M ^{lle} LE BRETON	T	Physiologie générale.
		Biologie maritime.	SALEM	T	Mathématiques générales

PROFESSEURS (suite).

LELONG	T	Mathématiques générales.	LEDERER	T	Chimie biologique.
DEVILLERS		Anatomie et Histologie comparées.	M ^{me} DUBREIL	T	Mathématiques (E.N.S.).
EHRESMANN	T	Topologie algébrique.	M ^{me} LELONG	T	Mathématiques (E.N.S.).
FRANÇON		Physique (S.P.C.N.).	COTTE	T	Physique (M.P.C.).
GLANGEAUD	T	Géographie physique et Géologie dynamique.	J.-E. DUBOIS	T	Chimie (S.P.C.N.).
GODEMENT	T	Mathématiques (M.P.C.).	LAMOTTE	T	Zoologie (E.N.S.).
PISOT	T	Calcul des probabilités.	MICHEL	T	Chimie (S.P.C.N.).
E. ROCH	T	Géologie.	OLMER	T	Énergétique générale.
SCHATZMANN		Astrophysique.	ROUAULT	T	Physique (Enseignem.).
TERMIER	T	Paléontologie stratigraphique.	GAUTHIER	T	Mécanique appliquée.
ZAMANSKY	T	Mathématiques générales.	BARCHEWITZ		Chimie physique.
JOLIOT	T	Physique nucléaire et Radioactivité.	BROSSEL		Physique atomique.
LENNUIER		Physique (P.C.B.).	BUSER		Biologie animale (P.C.B.).
RIZET		Génétique.	CAMUS		Biologie végétale (P.C.B.).
M ^{me} TONNELAT		Théories physiques.	CASTAING		Physique générale.
DIXMIER		Mathématiques (M.P.C.).	CURIEN		Minéralogie et cristallog.
SOUCHAY		Chimie générale (P.C.B.).	MOYSE		Physiologie végétale.
AIGRAIN		Physique (P.C.B.).	NOIROT		Evolution des êtres organisés.
BRUSSET		Chimie minérale (P.C.B.).	PANNETIER		Chimie (P.C.B.).
M. LÉVY		Physique théorique.	POSSOMPÈS		Biologie animale (P.C.B.).
LENORMANT		Physiologie.	PULLMANN		Chimie théorique.
M ^{me} CHAIX		Chimie biologique.	TEILLAC		Physique nucléaire et Radioactivité.
M ^{me} HUREL-PY		Biologie végétale (P.C.B.).	TONNELAT		Biologie phys.-chimique.
PIAUX		Chimie (P.C.B.).	VILLE		Econométrie.
BRUN		Mécanique expérimentale des fluides.	WILLEMART		Chimie (P.C.B.).
			BELLAIR	T	Géologie (S.P.C.N.).

Secrétaire Général Ch. MONIER.

A MONSIEUR LE PROFESSEUR

JEAN LAVAL

MON MAÎTRE

Hommage de reconnaissance.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41545923_0045

A MES PARENTS

A MA FEMME

A MES DEUX FILLES

Ce travail a été effectué au laboratoire de Physique théorique du Collège de France sous la direction de M. le Professeur J. Laval.

M. J. Laval m'a accueilli avec beaucoup de bienveillance à son laboratoire et a bien voulu m'y donner tous les moyens matériels pour que je puisse mener à bien mon travail. Son cours au Collège de France, 1954-1955 m'a été un guide précieux. Que M. J. Laval trouve ici l'expression de ma sincère gratitude pour tous ses conseils et de mon admiration pour la confiance qu'il sait communiquer aux jeunes chercheurs.

Je tiens à remercier aussi mes collègues chercheurs du laboratoire, MM. D. Cribier, Y. Lecorre et P. Mériel, pour l'esprit de camaraderie et d'entraide qu'ils ont su faire régner.

Mes remerciements vont aussi tout spécialement à M. C. Masson, mécanicien au laboratoire, dont l'expérience et les connaissances étendues ont permis la réalisation de nombreuses pièces délicates et en particulier la fabrication du four.

Je remercie M. E. Godelück qui, comme technicien, m'a apporté très souvent un concours indispensable, tant pour les calculs que pour de nombreuses mesures.

Je remercie aussi Mme Roca et Mlle Boudet qui à des titres divers m'ont apporté très souvent leur aide.

C'est en tant qu'assistant aux Travaux Pratiques de Physique de Propédeutique à Paris que j'ai réalisé ce travail.

DIFFUSION DES ÉLECTRONS PAR L'AGITATION THERMIQUE DES ATOMES D'UN CRISTAL ⁽¹⁾

PAR ANDRÉ LABERRIGUE

INTRODUCTION.

CHAPITRE PREMIER

Rappels théoriques sur la diffraction des électrons.

Comparaison entre la diffusion des rayons X et celle des électrons.
Intensité diffractée.
Influence de l'agitation thermique sur la diffusion.
Réfraction.

CHAPITRE II

Appareillage.

Dispositif des mesures des intensités.
Porte-cristal chauffant.
Préparation des monocristaux.

CHAPITRE III

Méthode expérimentale.

Réglage du faisceau direct.
Dimensions du faisceau. Divergence.
Stabilité et contrôle de la haute tension.
Intensité du faisceau direct.
Intensités diffusées.

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 12 mai 1958 devant la Commission d'examen.

CHAPITRE IV

Interprétation des résultats des mesures.

Influence de l'agitation thermique.

Intensités sélectivement réfléchies.

Intensités diffusées en dehors des directions des réflexions sélectives.

Résultats antérieurs.

Autres renseignements donnés par les mesures.

Réfraction.

Largeurs des spots.

Dissymétrie des courbes d'intensité.

CONCLUSION.

INTRODUCTION

Le sujet de ce travail est l'étude de la diffusion des électrons par l'agitation thermique des atomes dans un cristal. La diffusion des rayons X par cette même agitation thermique a été déjà fort étudiée et, à partir de la théorie de Laval (17) ou celle de Born (5), de nombreux auteurs en ont tiré des renseignements sur les oscillations atomiques ; par exemple : Olmer (30) et Walker (42) pour l'Al, Curien (7) pour le Fe_α , Meriel (25) pour le sel gemme et la sylvine, Jacobsen (12) pour le cuivre et Cribier (6) pour la fluorine.

Il a paru intéressant de voir si l'on retrouvait des résultats similaires à partir de la diffusion des électrons [Laval] (18).

Peu d'auteurs se sont penchés jusqu'à maintenant sur ce problème. S'ils l'ont fait, c'est toujours de façon assez superficielle et en se proposant uniquement une vérification de la théorie de Debye (9) reconnue depuis longtemps insuffisante.

Van Zanten (41) étudie la variation avec la température de l'intensité des anneaux de Debye-Scherrer obtenus par transmission à travers des feuilles polycristallines de Pb et d'Ag et en déduit les températures caractéristiques de Debye pour ces deux métaux.

Skrebowski (35), en comparant les diagrammes donnés par transmission par des monocristaux d'anthracène à la température ordinaire et à celle de l'oxygène liquide, prouve que le fond continu diffus décroît avec la température ainsi que, de façon plus visible, les tâches diffuses qui relient parfois plusieurs spots contigus. Mais la comparaison de ces diagrammes n'est légitime que s'ils se rapportent au même cristal,

orienté dans les deux cas de la même façon par rapport au faisceau, et à des intensités du faisceau direct identiques ou tout au moins comparables ; deux conditions qui n'ont pu être strictement contrôlées, de l'aveu même de l'auteur.

Plus récemment, Menzel-Kopp et Menzel (23) (24) ont étudié l'influence de la température sur les diagrammes donnés par des monocristaux métalliques portés à des températures de 200° à $1\,000^{\circ}$ C, par réflexion (Cu, Ag) ou transmission (Cu, Ag, Au). Les auteurs mesurent le plus grand angle θ_g pour lequel, à une température donnée, il est encore possible de voir un spot de Bragg ou de Laue. Et à partir des courbes $\theta_g(T)$, ou plus exactement en raison de nombreuses causes d'erreurs, à partir du faisceau de courbes qu'ils obtiennent, ils essaient de remonter aux amplitudes moyennes des vibrations atomiques en appliquant la théorie de Debye. Mais les valeurs trouvées à partir d'une certaine température sont beaucoup trop grandes et les auteurs tentent d'améliorer leur interprétation en prenant des températures caractéristiques de Debye variables avec la température de l'expérience. L'amélioration est sensible mais la comparaison faite avec les résultats similaires trouvés à partir de la diffusion des rayons X est peu satisfaisante.

Dans le travail présenté ici, c'est à partir de la mesure absolue des intensités des faisceaux diffractés dans les directions des réflexions sélectives de Bragg et en dehors de ces directions, que j'ai voulu montrer l'influence de l'agitation thermique sur la diffusion. Malgré la complexité du phénomène de réflexion ces mesures permettent, sans aucune ambiguïté, de préciser quelle est, en fonction de la température, la forme du facteur d'affaiblissement des intensités sélectivement réfléchies et, en dehors des réflexions sélectives, quelle est la partie de la diffusion qui revient à l'agitation thermique.

CHAPITRE PREMIER

Rappels théoriques sur la diffraction des électrons.

Mon intention n'est pas de transcrire ici les théories cinématiques et dynamiques de la diffraction des électrons. Je renvoie aux ouvrages complets sur le sujet de Thomson, von Laue et Pinsker. Je veux simplement rappeler quelques propriétés bien caractéristiques de la diffraction des électrons par un cristal pour légitimer les expériences qui ont été faites et expliquer les résultats trouvés.

Comparaison entre la diffusion des rayons X et celle des électrons. Raisons du choix fait. — Il y a une grande analogie entre la diffraction des rayons X et celle des électrons par des cristaux. Il suffit d'attribuer aux ondes électroniques la longueur d'onde associée de L. de Broglie :

$$\lambda = \frac{h}{mv} = \frac{h}{\sqrt{2m_0eV \left[1 + \frac{eV}{2m_0c^2} \right]}}$$

(c , h , e , m_0 sont respectivement la vitesse de la lumière, la constante de Planck, la charge et la masse de l'électron et V le potentiel accélérateur) pour, à partir de raisonnements similaires à ceux faits pour les rayons X, expliquer les figures de diffraction obtenues en bombardant par des électrons monocinétiques dans des conditions convenables, des mono- ou polycristaux. Mais aussitôt deux grandes différences importantes sont à considérer, ce qui fait que maints problèmes, facilement étudiables à l'aide des uns, le sont beaucoup moins à l'aide des autres et inversement.

1) L'interaction avec la matière est beaucoup plus grande pour les électrons que pour les rayons X. La représentation suivante utilisée déjà par Thomson permet de s'en faire rapidement une idée. Elle consiste à comparer les rapports :

$$\frac{\text{amplitude de l'onde diffusée par 1 atome}}{\text{amplitude de l'onde incidente}},$$

dans le cas des électrons et dans celui des rayons X à la même distance r de cet atome.

Électrons :

$$\frac{A'}{A} = \frac{1}{r} \frac{me^2}{2h^2} (Z - f_r) \frac{\lambda^2}{\sin^2 \theta} = \frac{1}{r} \cdot 2,38 \cdot 10^{-10} (Z - f_r) \left(\frac{\lambda 10^8}{\sin \theta} \right)^2,$$

Rayons X :

$$\frac{A'}{A} = \frac{1}{r} \frac{e^2}{mc^2} f_r = \frac{1}{r} \cdot 2,82 \cdot 10^{-13} f_r.$$

Z est le nombre atomique, f_r , le facteur de structure atomique, θ , l'angle de diffusion.

Les significations des autres lettres ont déjà été indiquées.

Le premier rapport est 10^3 à 10^4 fois plus grand que le second, c'est-à-dire que l'intensité de la diffusion par un atome est 10^6 à 10^8 fois plus grande dans le cas des électrons que dans celui des rayons X. La figure 1 est relative au cas de l'aluminium.

Il en résulte que le pouvoir de pénétration des électrons dans la matière est très faible et que pour obtenir des images de diffraction par transmission il est absolument nécessaire de n'utiliser que des feuilles poly-ou monocristallines très minces. On considère généralement

que des épaisseurs de quelques centaines d'angströms sont des limites supérieures à ne pas dépasser pour les tensions d'accélération habituellement utilisées de 20 à 80 kV. Voir par exemple Trillat (38).

Pour ces épaisseurs il est encore actuellement impossible d'obtenir des monocristaux sans défauts importants, que le cristal se clive facilement ou non (courbure, trous, variations d'épaisseur). Ces défauts, toujours difficiles à connaître, influent d'une façon ou d'une autre sur la diffusion et il est alors pratiquement impossible de trouver ce

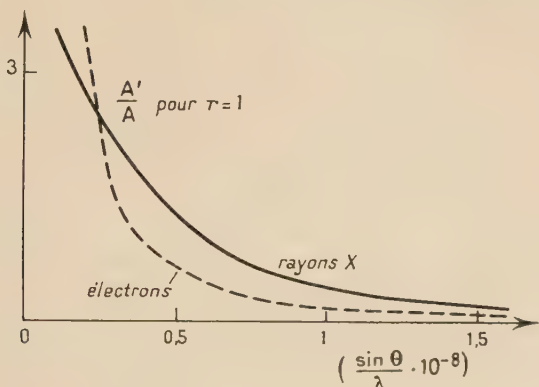


Fig. 1. — A' est l'amplitude diffusée par un atome d'Al pour une amplitude incidente A .

L'ordonnée est multipliée par 10^{12} pour les rayons X et par 10^8 pour les électrons.

qui, dans la diffusion globale en un point donné, revient à l'agitation thermique des atomes.

Restent les feuilles polycristallines constituées de très petits cristaux qui, eux, peuvent être considérés comme presque parfaits. On peut certainement obtenir des résultats intéressants pour les directions de réflexions sélectives mais, en dehors de ces directions, l'orientation au hasard de tous les cristaux rend très complexe l'interprétation de l'intensité mesurée pour un angle de diffusion bien déterminé. Malgré tout, de mesures d'intensité absolue à l'aide de telles feuilles on doit pouvoir tirer des renseignements utiles, bien qu'à ma connaissance de telles mesures n'aient encore jamais été effectuées. Seules jusqu'à maintenant, mais en assez grand nombre, des mesures relatives d'intensité des anneaux de Debye-Scherrer ont été faites : cf. Pinsker (32) pour tout ce qui est antérieur à 1950 et, pour des mesures plus récentes, Lennander (21). Mais bien que l'appareil utilisé ici permette des

mesures d'intensité absolue de tels anneaux, je n'ai pas encore entrepris cette étude.

J'ai préféré étudier les intensités des faisceaux diffusés dans le cas de la réflexion sur un monocristal relativement gros, les résultats à ce sujet étant pratiquement inexistant. Seul Beeching (2) a donné quelques courbes d'intensité dans le cas de la diffusion par une face (111) du diamant à la température ordinaire.

2) La seconde différence est relative aux longueurs d'onde et donc aux angles de Bragg. Le tableau ci-dessous en donne une idée. Il représente les longueurs d'onde associée de L. de Broglie pour diverses tensions d'accélération.

V volt . . .	25	100	500	1 000	5 000	10 000	30 000	50 000
$\lambda \text{ \AA} . . .$	2,45	1,226	0,548	0,387	0,173	0,122	0,0698	0,050

A première vue il ne semble pas difficile d'obtenir des ondes électroniques de longueurs d'onde comparables à celles des rayons X utilisés en diffraction cristalline (Cu K_α 1,54 $\text{\AA}$; Mo K_α 0,710 $\text{\AA}$) et, partant, d'opérer dans des conditions géométriques identiques pour une même réflexion sélective. Mais pour les électrons correspondants (électrons lents) l'interaction avec la matière est alors si importante qu'il est nécessaire de prendre de multiples précautions expérimentales quant au vide dans l'appareil (pour des électrons de quelques centaines de volts la pression ne peut dépasser 10^{-8} mm de mercure sans que la diffusion par les gaz résiduels ou adsorbés à la surface du cristal rende toute mesure d'intensité inutile). Or, un tel vide est bien difficilement réalisable dans une enceinte aussi importante que celle qui est nécessaire surtout si l'on est obligé, ce qui est le cas, de l'ouvrir de temps en temps.

Un autre inconvénient pour des études courantes est, qu'en raison de la faible énergie des électrons, il n'est pas possible, à moins de les accélérer après la diffraction, d'obtenir des diagrammes nets sur des plaques photographiques ou un écran fluorescent. Aussi les tensions d'accélération les plus couramment employées vont de 20 à 60 et même 100 kV, ce qui correspond à des longueurs d'onde de 10 à 20 fois plus petites que celles des rayons X ordinaires.

Comme il est bien connu, en raison du facteur $(\lambda/\sin \theta)$ dans l'expression donnant l'intensité diffusée par l'atome, cette intensité diffusée décroît très vite quand l'angle de diffusion croît et ce n'est que pour des $\frac{\sin \theta}{\lambda} < 1,5 \text{ \AA}^{-1}$ que l'on a des intensités diffusées mesurables

avec précision, c'est-à-dire pour des directions faisant 5° ou 10° au maximum avec la direction du faisceau incident.

Les angles de réflexion sont donc toujours très petits, ce qui, joint au fait que le pouvoir diffusant est énorme, donne une pénétration très faible du faisceau d'électrons dans le cristal bombardé. Par exemple en reprenant un calcul fait par Raether (33), p. 77 :

AB = L étant le libre parcours moyen pour les électrons considérés,

T = HB profondeur de pénétration moyenne est :

$$T = L \cdot \sin \theta.$$

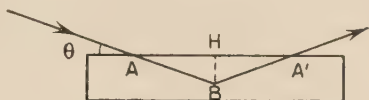


Fig. a.

Cette formule montre, ce qui est évident, que la pénétration est la plus grande sous incidence normale. C'est le cas de la transmission qui ne sera pas à considérer ici.

Il reste pour augmenter la profondeur de pénétration T à accroître θ en augmentant λ , donc à diminuer V, la tension d'accélération, mais alors on diminue en même temps L. Quelle est l'influence prépondérante ?

λ est proportionnelle à $1/\sqrt{V}$ mais L l'est à V ; donc :
T est proportionnelle à $\sqrt{V}$.

En prenant $L = 500 \text{ \AA}$, ce qui correspond à peu près à l'aluminium pour $V = 35 \text{ kV}$, on a : $\theta_{222} = 1^\circ 35'$ et $T \simeq 14 \text{ \AA}$.

Mais ce calcul est assez grossier quant à la valeur notamment de L et ne donne que le sens dans lequel T peut varier en fonction de V. Il n'en reste pas moins que l'on a peu d'intérêt à diminuer la tension pour accroître les angles de réflexion. Car alors on accroît notablement la proportion de chocs multiples et, à moins de pouvoir analyser en énergie les faisceaux diffractés, on augmente les difficultés d'interprétation des mesures.

Il serait pourtant intéressant de pouvoir le faire car, pour des angles de réflexion de quelques degrés, les défauts de surface interviennent notablement ce qui, pour de nombreuses études (couches d'oxyde, états de surface, par exemple), est très profitable mais fort gênant pour le problème qui m'intéresse.

Donc, si en augmentant la tension d'accélération on accroît certainement la pénétration, au contraire, les angles de réflexion diminuent notablement et l'influence de l'état de surface devient prépondérante. J'ai dû choisir un moyen terme et c'est finalement autour de 35 kV que les mesures ont été faites pour la plupart.

Pour le choix du cristal, si des cristaux à belle face de clivage sont idéaux, leur inconvénient majeur est qu'ils ne sont généralement pas

bons conducteurs (ce qui est fort gênant pour des mesures exigeant un bombardement relativement long du cristal à cause de l'effet de charge). Le cas des semi-conducteurs mériterait certes une attention particulière mais je me suis limité jusqu'à maintenant aux monocristaux d'aluminium. Ce métal présente en effet plusieurs avantages : l'approximation de Born est encore applicable en théorie cinématique et la pénétration des électrons est une des plus grandes à cause de la faible densité. On peut en obtenir facilement de beaux monocristaux et la surface une fois polie électrolytiquement peut être très plate et presque sans oxyde. Je reviendrai plus tard sur ce sujet.

Rappels théoriques au sujet de l'intensité diffractée. — En ce qui concerne la valeur de l'intensité diffractée par un cristal, comme pour les rayons X, deux théories, l'une cinématique, l'autre dynamique, de Bethe, permettent en principe de la calculer. Elles donnent deux résultats très différents. D'après la première, l'intensité est proportionnelle à $|V_{hkl}|^2$ et d'après la seconde à $|V_{hkl}|$, V_{hkl} étant les coefficients d'indices (h, k, l) dans le développement en série de Fourier du potentiel électrique à l'intérieur du cristal.

La controverse depuis longtemps ouverte au sujet de la validité respective de ces deux théories peut être résumée ainsi : tant que le cristal ou les cristaux diffusants sont suffisamment petits, la théorie cinématique est applicable, mais après on ne sait pas grand-chose. Ceci a été bien vérifié d'après Pinsker (seulement en ce qui concerne la variation relative de l'intensité en fonction de l'angle de diffusion) pour de nombreux métaux (Al, Cu, Ag, Au, Mg, Zn et Sn) (32), p. 155.

L'auteur trouve que jusqu'à des épaisseurs de $5 \text{ à } 6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$ la théorie géométrique reste valable.

Blackmann (4) avait théoriquement trouvé des valeurs beaucoup moins grandes mais les calculs étaient surtout basés sur des résultats anciens et en désaccord avec ceux obtenus depuis par Pinsker. Celui-ci explique la divergence par le fait que, dans les feuilles polycristallines alors utilisées, l'orientation des monocristaux n'était pas uniforme en tous sens.

Mais pour des épaisseurs supérieures la théorie dynamique est-elle applicable ?

Jusqu'à maintenant aucune mesure d'intensité n'a été faite pour répondre à cette question. On a regardé si la largeur des maxima de diffraction était celle qui est prévue par la théorie dynamique. Les résultats ne sont pas très convaincants. Pour les premiers ordres de réflexion les largeurs expérimentales des maxima sont du même ordre que les largeurs prévues théoriquement mais la divergence est énorme à partir d'ordres tels que le 3^e : pour (333) du diamant Beeching (2) trouve 28' contre 2' théoriques, et pour ZnS Kikuchi (13) trouve

expérimentalement des largeurs 20 fois plus grandes que les largeurs prévues.

Une vérification plus satisfaisante de la théorie dynamique est l'utilisation qui en est faite par MacGillavry (22) pour expliquer les diagrammes obtenus à l'aide de faisceaux convergents par la méthode de Möllenstedt (26). Sans aucune mesure d'intensité on peut, d'après la topographie des tâches, déterminer les coefficients du développement en série de Fourier du potentiel dans le cristal. Mais malgré tout, certaines anomalies subsistent (Ackermann (1) avec Pb I₂).

On peut encore reprocher à cette théorie qu'elle ignore le phénomène d'absorption et introduit des conditions aux limites assez discutables tout en faisant intervenir des calculs très compliqués, déjà, dans l'hypothèse d'un potentiel, triplement périodique certes, mais stationnaire, sans aucune considération d'agitation thermique.

Aussi pour voir qu'elle est l'influence de l'agitation thermique sur la diffraction des électrons je me contenterai de renvoyer au cours de J. Laval (20) et à sa note aux *Comptes rendus de l'Académie des Sciences* (18).

Influence de l'agitation thermique sur la diffusion. — Comme Laval, je présenterai les résultats théoriques et expérimentaux à l'aide du réseau réciproque.

Soit $\vec{a}_i$ les translations fondamentales du réseau cristallin $i = 1, 2, 3$. Le réseau réciproque est construit sur les 3 vecteurs $\vec{A}_i$ définis par :

$$\vec{A}_i \cdot \vec{a}_l = \delta_{il} \quad \left\{ \begin{array}{l} 0 \text{ si } i \neq l \\ 1 \text{ si } i = l. \end{array} \right.$$

Un nœud de ce réseau sera désigné par M et donc une translation par :

$$\vec{OM} = \sum_{i=1}^3 M_i \vec{A}_i; \quad M_i \text{ entier } \leq 0,$$

O (0, 0, 0) est l'origine du réseau polaire.

Soit $\vec{IO} = \vec{k}$ le vecteur de module $1/\lambda$ dans la direction et le sens des électrons incidents et $\vec{IX} = \vec{k}'$ le vecteur de module $1/\lambda'$ dans la direction et le sens des électrons diffusés.

X est appelé : pôle de diffusion et $\vec{OX}$: vecteur de diffusion.

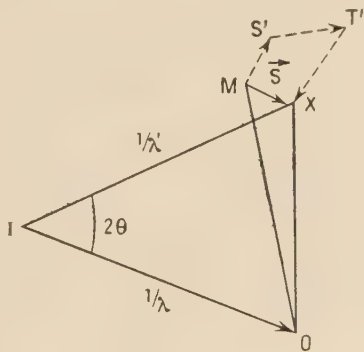


Fig. b.

Ses composantes seront désignées par :

$$X_{\alpha} (\alpha = 1, 2, 3).$$

Son amplitude est :

$$|\vec{OX}| = X \simeq \frac{\sin \theta}{\lambda} \quad \text{car } \lambda \neq \lambda'.$$

Dans le cristal de N motifs, de g atomes, la position instantanée d'un atome (m, j) , situé dans le motif m , en position j , est définie par :

$$\vec{x}_j^m = \vec{m} + \vec{j} + \vec{u}_j^m.$$

$$\vec{m} = \sum_{i=1}^3 m_i \vec{a}_i \quad m_i \text{ entier } \leq 0.$$

$$\vec{j} = \sum_{i=1}^3 j_i \vec{a}_i \quad j_i < 1.$$

$\vec{j}$ va du nœud $(m_1 m_2 m_3)$ à la position moyenne j dans le motif cristallin (m) .

$\vec{u}_j^m$ est le vecteur élongation qui va de la position moyenne de l'atome mj à sa position instantanée.

Cette élongation est décomposable en $3Ng$ oscillations harmoniques, progressives, planes, pilotées par les vecteurs d'onde $\vec{M} + \vec{S}, \vec{M} + \vec{T} \dots$ de fréquences $\nu_{S\gamma}, \nu_{T\beta} \dots$.

$\vec{S}, \vec{T}, \dots$ sont les vecteurs d'onde fondamentaux en nombre N :

$$\beta, \gamma, \dots = 1, 2, \dots 3g.$$

En ce qui concerne la diffusion, Laval démontre :

1) Si le pôle de diffusion X est en un nœud M du réseau réciproque (cas de la réflexion sélective selon la loi de Bragg), l'agitation thermique des atomes dans le cristal diminue les intensités des réflexions sélectives, le facteur de température étant le même que pour les rayons X , à savoir le carré du facteur de Debye-Waller :

$$\bar{H}_j = \exp(-8\pi^2 X^2 V_j^2)$$

$$V_j^2 = \sum_{S\gamma} K_{S\gamma}^2 \varepsilon_{S\gamma}^a$$

$$K_{S\gamma}^j = \frac{1}{X} \left(\frac{\mu}{\mu_j} \right)^{\frac{1}{2}} \left| \sum_{\alpha} X_{\alpha} \rho_{\alpha S\gamma}^j \exp(i2\pi \varphi_{\alpha S\gamma}^j) \right|$$

$$\varepsilon_{S\gamma} = \frac{1}{2} (\varepsilon_{-S\gamma} + \varepsilon_{+S\gamma}),$$

$\vec{\rho}_{S_Y}^j$ est le vecteur amplitude de l'onde S_Y pour l'atome j .

La somme des carrés des modules est normée à l'unité :

$$\sum_{j\alpha} (\rho_{\alpha S_Y}^j)^2 = 1,$$

$2\pi\varphi_{S_Y}^j$ est une phase qui tient compte du fait que la propagation de l'onde n'est pas uniforme à travers le motif cristallin.

V_j est l'amplitude quadratique moyenne suivant la direction $\vec{X}$ de l'oscillation accomplie par l'atome j .

μ : masse du motif cristallin.

μ_j : masse de l'atome j .

ε_{-S_Y} et ε_{+S_Y} sont les amplitudes quadratiques moyennes quantifiées correspondant respectivement à la perte du quantum d'énergie $h\nu_{S_Y}$ et au gain du même quantum pour l'oscillation harmonique S_Y .

Si on peut supposer l'équipartition de l'énergie satisfaite :

$$\varepsilon = kT.$$

2) Si le pôle de diffusion X n'est pas en un nœud M du réseau réciproque on peut encore dire qu'il y a réflexion sélective mais sur les plans d'ondes de vecteur de propagation, $\vec{OX}$ de longueur $1/\Lambda$ (Λ étant la longueur d'onde) avec :

$$\vec{OX} = (\vec{M} \pm \vec{S} \pm \vec{T} \pm \dots).$$

Le pouvoir diffusant ϖ c'est-à-dire le flux des électrons rejetés dans une même direction (ici $\vec{IX}$) rapporté au flux des électrons incidents par unité de section et à l'unité d'angle solide est la somme de :

$$\varpi_1 + \varpi_2 + \dots + \varpi_n +$$

où ϖ_n est la contribution des réflexions sélectives sur les ondes de potentiel produites par n oscillations harmoniques des atomes.

Tant qu'on est assez loin du point de fusion (et pour des vecteurs $\vec{OX}$ encore petits), c'est le pouvoir diffusant ϖ_1 dit du premier ordre, qui est prépondérant.

Son expression est :

$$\begin{aligned} \varpi_1 &= \frac{X^2}{\mu} \sum_{Y=1}^{3q} \left(\frac{W}{v^2} \right)_{S_Y} \left| \sum_j f_j(\vec{X}) \bar{H}_j K_{S_Y}^j \exp [i2\pi(\vec{M} \cdot \vec{j} + \varphi_{S_Y}^j)] \right|^2 \\ f_j(X) &= \frac{2}{a_0} \left(\frac{Z_j - F_j(X)}{X^2} \right) \quad a_0 = \frac{h^2}{me^2} = 0,208 \cdot 10^{-8} \text{ cm} \\ W_{S_Y} &= h\nu_{S_Y} \left(\frac{1}{e^{h\nu_{S_Y}/kT} - 1} + \frac{1}{2} \right). \end{aligned}$$

Z et $F_j(X)$ sont respectivement le nombre atomique et le facteur de structure pour l'atome j .

Le pouvoir diffusant du même ordre pour les rayons X rapporté de même au motif cristallin est : Laval (19) :

$$\varpi_1' = \frac{X^2}{\mu} \sum_{\gamma=1}^{2g} \left(\frac{W}{v^2} \right)_{S_\gamma} \left| \sum_j g_j(\vec{X}) \bar{H}_j K_{S_\gamma}^j \exp [i2\pi(\vec{M} \cdot \vec{j} + \varphi_{S_\gamma}^j)] \right|^2,$$

où :

$$g_j(X) = r_0(1 + \cos^2 \theta) F_j(X),$$

$$r_0 = \frac{e^2}{mc^2} = 2,82 \cdot 10^{-13} \text{ cm.}$$

On trouve donc pour les électrons la même expression, les facteurs $g_j(X)$ étant remplacés par $f_j(X)$. Mais la différence est considérable en grandeur, c'est celle signalée déjà ci-dessus au sujet de l'amplitude de l'onde diffusée par un atome. Le rapport $f_j(X)/g_j(X)$ a un minimum qui est de l'ordre de $3 \cdot 10^3$, ce qui, au point de vue du pouvoir diffusant, donne un rapport de 10^7 en faveur des électrons (pour le même vecteur de diffusion).

Ces résultats ne sont valables *que si la théorie cinématique est applicable*. Elle ne l'est certainement pas dans le cas de la réflexion sur un bloc monocristallin en ce qui concerne les réflexions sélectives par les plans réticulaires du cristal. Mais ici l'interaction avec les ondes d'agitation thermique est beaucoup plus faible que pour ces derniers plans. On peut donc espérer la théorie cinématique légitime.

En orientant le cristal par rapport au faisceau incident pour éviter toute réflexion sélective, les électrons pénètrent certainement beaucoup plus et on se rapproche un peu mieux des conditions supposées dans la théorie d'un cristal volumineux. Malheureusement, si la pénétration est plus grande, la probabilité des chocs inélastiques est plus grande elle aussi. Mais les électrons ainsi diffusés sont, d'abord, très peu déviés, et, surtout, ne sont capables d'aucune interférence contrairement à ceux diffusés par les ondes d'agitation thermique. Donc près d'une réflexion sélective où la diffusion par ces ondes est la plus grande, l'effet de température doit être assez net sur l'intensité diffusée.

RÉFRACTION. — Un autre phénomène à signaler, important dans le cas de la réflexion, et donc pour les résultats qui suivent, est celui de la réfraction.

La longueur d'onde des électrons dans le vide est :

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_0 eV \left(1 + \frac{eV}{2m_0 c^2} \right)}}$$

pour une énergie eV .

Mais si on désigne par g_0 le potentiel électrique moyen dans le cristal (g_0 est toujours > 0), l'énergie cinétique moyenne des électrons dans le cristal devient $e(V + g_0)$ et la longueur d'onde correspondante est :

$$\lambda_0 = \frac{h}{\sqrt{2m_0e(V + g_0) \left[1 + e \left(\frac{V + g_0}{2m_0c^2} \right) \right]}}$$

les ondes électroniques subissent donc, en pénétrant dans le cristal, une réfraction d'indice $\mu = \frac{\lambda}{\lambda_0}$ et :

$$\mu^2 - 1 = \left\{ 1 + \frac{eV}{2m_0c^2} \right\} \frac{g_0}{V}.$$

Or $\frac{eV}{2m_0c^2}$ est de quelques centièmes au maximum :

pour $V = 30 \text{ kV}$, c'est 0,03. Donc avec une très bonne approximation on peut prendre :

$$\mu^2 - 1 \simeq \frac{g_0}{V}.$$

En raison de cette réfraction les spots de Bragg sont déplacés vers le faisceau incident de quantités facilement observables, les déplace-

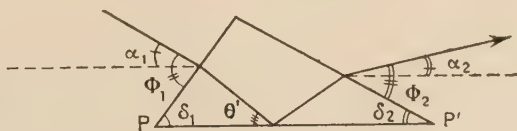


Fig. 2.

ments relatifs des spots étant indépendants de la tension d'accélération V et la mesure de ce déplacement permet de trouver g_0 (cf. Pinsker (32), p. 119).

En s'appuyant sur ce phénomène de réfraction Raether (33), p. 81, a tenté d'expliquer l'élargissement, parfois considérable aux faibles angles, des spots de Bragg.

L'auteur calcule le déplacement d'un spot de Bragg quand la surface du cristal est inclinée comme l'indique la figure 2 par rapport aux plans réticulaires réfléchissants PP' :

$$\begin{aligned} \Phi &= \delta + \alpha \quad \text{avec} \quad \delta \leq 0 \\ \cos(\delta + \alpha) &= \mu \cos(\delta + \theta') \end{aligned}$$

avec $\mu = 1 + \frac{g_0}{2V}$ on trouve, en développant et considérant que les angles (à part peut-être δ) sont toujours $< 5^\circ$:

$$\theta' - \alpha = \frac{g_0}{2V} \left(\frac{1}{\theta' + \delta} \right).$$

Pour sortir du cristal, le rayon électronique subit la déviation similaire (avec un angle δ qui n'a pas forcément la même valeur que pour la face d'entrée).

$(\theta' - \alpha)$ est tabulée pour le cas de l'aluminium et plusieurs réflexions sélectives au chapitre IV, tableau VIII.

g_0 a été pris égal à 4 V et la tension V d'accélération est 35 kV.

Comme $\theta' \simeq \theta$ l'écart à la réflexion de Bragg est donc donné par $(\theta' - \alpha)$, et cet écart peut être très grand.

Il suffit donc de supposer une ondulation de la surface, c'est-à-dire un domaine de variation continue pour δ pour expliquer l'élargissement des spots qui, de toute façon, doit se faire du côté du faisceau direct par rapport à la position du spot de Bragg sans réfraction.

Nous comparerons les résultats de ces calculs aux valeurs expérimentales.

CHAPITRE II

Appareillage.

Le diffracteur utilisé est à cathode froide du type Induni. Le faisceau est diaphragmé par un trou d'anode de 0,1 à 0,15 mm de diamètre et concentré par une bobine magnétique sur un écran fluorescent placé à une distance $d = 13$ cm de l'axe de rotation du porte-cristal. Autour de cet axe et à la même distance d , peut tourner la fente d'un cylindre de Faraday.

La haute tension est conçue pour des fonctionnements allant jusqu'à 50 kV et des débits ne dépassant pas 1 mA. La tension utilisée le plus couramment est 35 kV et le débit total 50 à 100 μ A. Grâce à une grande capacité de 0,1 μ F et à une résistance de 1 M Ω les ondulations de la tension redressée sont très réduites. J'ai vérifié qu'en fonctionnement normal et pour le débit maximum d'utilisation, cette ondulation était plus petite que 1/1 000 en valeur relative. C'est là un perfectionnement important par rapport au circuit haute tension de Beeching qui est le seul, avant moi, à avoir tenté des mesures électrométriques d'intensité dans le cas de la réflexion, (la capacité n'était que de 0,014 μ F et, de plus, les débits nécessaires étaient beaucoup plus importants).

Le système de pompage : pompes primaire, à deux étages, et secondaire, à diffusion d'huile, avec une vanne-chicane, permet un vide limite de 1 à $2 \cdot 10^{-5}$ mm de mercure obtenu après 1 heure de pompage (même pendant le fonctionnement de la cathode froide, malgré l'entrée d'air inhérente à ce type de cathode, le vide limite n'est pas changé).

Dispositif permettant les mesures d'intensité. — Une petite bobine en fil de cuivre d'une dizaine de spires placée, avant le cristal, sur le trajet du faisceau direct, permet de dévier ce faisceau sur un récepteur relié à un galvanomètre d'une sensibilité de $2,7 \cdot 10^{-11}$ A/mm.

L'intensité du faisceau d'électrons étant en moyenne de $1,5 \cdot 10^{-9}$ A, elle peut être ainsi contrôlée à 1 p. 100 près et, de plus, le faisceau n'arrive sur le cristal que pendant le temps juste nécessaire à une mesure d'intensité diffusée. Cette dernière mesure se fait à l'aide d'un cylindre de Faraday comme récepteur du faisceau d'électrons. La fente d'entrée, rectangulaire, est réglable en largeur de façon continue de 3 mm à 0. Après cette fente, un trou circulaire de diamètre approprié suivant les dimensions de la section du faisceau direct à ce niveau, permet le réglage en hauteur de la fente d'entrée.

Le disque récepteur central du cylindre est relié à l'aiguille d'un électromètre de Lindemann monté en hétérostatique symétrique. La méthode de mesure du courant est une méthode de zéro. A l'aide d'une résistance potentiométrique de 1 000 Ω , mesurable à 1 Ω près, alimentée par un accumulateur de 2V, on applique sur une couronne cylindrique entourant une tige centrale reliée au disque récepteur, la tension suffisante pour maintenir nulle, par influence, la charge de ce récepteur. Le coefficient d'influence a été mesuré à 5/1 000 près et trouvé égal à $\Gamma = 5,72 \mu\text{F}$.

Par exemple si au bout du temps t il a fallu, pour maintenir l'aiguille de l'électromètre constamment au zéro, appliquer sur la couronne

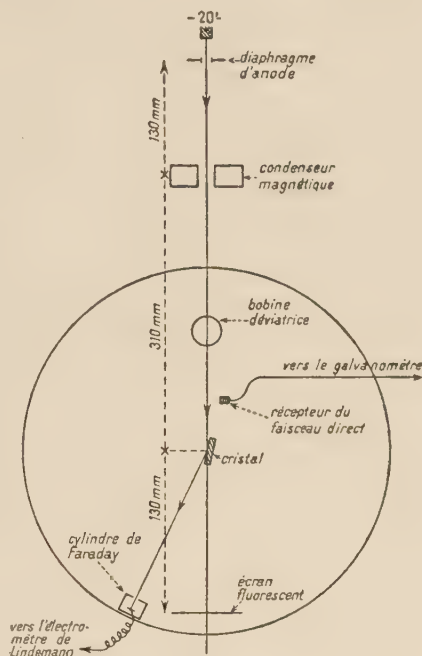


Fig. 3. — Schéma général.

cylindrique une tension U , l'intensité du faisceau entrant dans le cylindre est I , donnée par :

$$(1) \quad It = \Gamma \cdot U,$$

ce qui pour une division du potentiomètre par seconde donne :

$$I = 1,05 \cdot 10^{-14} A.$$

Or, pour la sensibilité maximum utilisée pendant les mesures, en l'absence de tout courant, un déplacement moyen d'une division du potentiomètre est suffisant pour maintenir l'aiguille fixe pendant 3 minutes. En considérant mesurable, un courant 2 à 3 fois plus grand que celui correspondant au mouvement propre ainsi défini, il était donc possible de mesurer des courants de $1,8 \cdot 10^{-16}$ A environ. Mais ceci implique, pour comparer entre elles des intensités de cet ordre avec une erreur de quelques centièmes seulement, une durée de la mesure de 5 à 10 minutes, bien trop longue pour être faite plusieurs fois, avec un même cristal et en utilisant une même portion de ce cristal. En fait la plupart des mesures sont faites en 5, 10 ou 20 secondes, ce qui permet de mesurer, à 1 ou 3 p. 100 près, des intensités jusqu'à 10^{-14} A.

Le cylindre de Faraday est aussi utilisable pour étudier le faisceau direct. La mesure des courants correspondants, allant de $2 \cdot 10^{-9}$ à 10^{-11} A suivant la largeur de la fente d'entrée, se fait à l'aide du même montage électrométrique. Seul est nouveau un condensateur de $C = 9\,700 \pm 50 \mu F$ qui, placé dans le circuit de l'aiguille de l'électromètre, permet la compensation des charges. L'intensité se trouve par la formule (1), C remplaçant Γ .

Il est donc, avec tout cet ensemble, tout à fait possible de mesurer à 1 ou 2 centièmes près des flux d'électrons correspondants à des intensités comprises entre 10^{-8} et 10^{-16} A et, surtout, de comparer l'intensité diffusée, dans une direction faisant un angle donné avec la direction incidente, avec l'intensité du faisceau direct.

Porte-cristal chauffant. — Le porte-cristal est celui fourni par la Maison Trüb-Taüber. Il permet les déplacements habituels, soit : deux rotations d'axes perpendiculaires entre eux et à l'axe moyen du faisceau horizontal et deux translations parallèles à ces deux axes. Quelques modifications de construction ont été apportées pour porter un petit four que je vais décrire maintenant et une rotation supplémentaire d'axe perpendiculaire aux deux autres.

Le four permet de chauffer le cristal jusqu'à 600° C. Il comprend comme élément chauffant du fil de Kanthal et comme support isolant de la Lava. La charpente métallique et tous les réflecteurs sont en acier

inoxydable. L'enroulement du fil est fait de telle façon que le champ magnétique dû au courant chauffant et qui risque de perturber la forme et la position du faisceau d'électrons soit le plus petit possible. Pour cette même raison la résistance est choisie assez grande ($100\ \Omega$). Ainsi, il n'est pas nécessaire de dépasser un débit de $0,5\text{ A}$ pour obtenir la

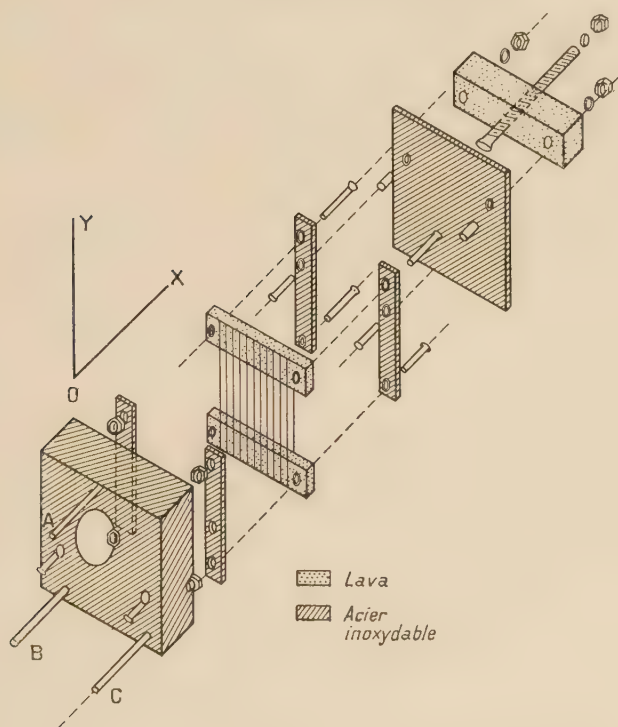


Fig. 4 a). — Diverses parties du four. Les réflecteurs thermiques ne sont pas représentés de même que le deuxième élément chauffant, identique à celui figuré.

température de 600°C . Pour cette intensité le faisceau direct n'est même pas déplacé de 1 minute. Aussi a-t-il été jugé inutile d'interrompre le chauffage pendant une mesure d'intensité comme font certains expérimentateurs avant de prendre la photographie d'un diagramme.

Préparation des monocristaux — Les monocristaux utilisés, obtenus à partir d'aluminium 99,99 p. 100 se présentent sous forme cylindrique $10 \times 10\text{ mm}$ pour ceux donnés par M. Olmer ou parallélépipédique $20 \times 15 \times 4\text{ mm}$ pour ceux préparés par moi-même, chez M. Chaudron.

La méthode de préparation est celle de l'écrouissage critique indiquée par P. Lacombe et L. Beaujard (15).

Leur orientation est trouvée soit par photographie d'un diagramme de diffraction électronique obtenu sur l'écran fluorescent, soit à l'aide d'un spectromètre à rayons X, en utilisant un compteur de Geiger-Müller.

Ce dernier procédé permet de déterminer, à quelques minutes d'angle près, l'angle fait par les plans réticulaires d'indices donnés, avec la surface du cristal. Il s'agit alors d'amener la surface de l'éprouvette à quelques minutes du plan réticulaire choisi. On y arrive par le polissage mécanique, à l'alumine uniquement, car le polissage à l'émeri, même

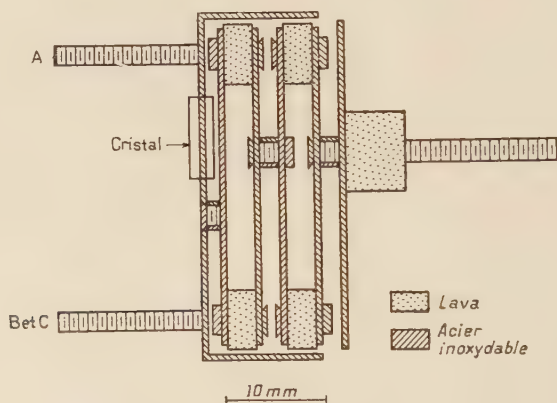


Fig. 4 b). — Coupe du four par un plan parallèle à XOY du dessin (a).
Les réflecteurs, non figurés, s'emboîtent dans les vis A, B, C.

(0 000), perturbe beaucoup trop la couche superficielle. Par polissage électrolytique on enlève ensuite la couche de Belby. Le bain utilisé est le bain Jacquet classique : 2/3 anhydride acétique R. P. et 1/3 acide perchlorique du commerce en volume. L'électrolyte doit être suffisamment refroidi pendant le polissage pour que sa température ne dépasse jamais 14°. Les autres conditions de polissage sont celles indiquées par Jacquet (10). Suivant le travail mécanique fait sur la surface monocristalline, la durée du polissage électrolytique pouvait varier de 10 minutes à 1 heure. Les surfaces polies sont ensuite lavées dans un fort courant d'eau ou, mieux encore, à l'acétone et ensuite rincées à l'alcool absolu, une légère couche d'alcool restant sur le cristal jusqu'à son introduction dans l'appareil.

Tous les monocristaux ainsi préparés donnent de très beaux diagrammes avec des lignes de Kikuchi bien fines, ce qui est généralement considéré comme l'indice d'un réseau unique et presque parfait.

CHAPITRE III

Méthode expérimentale.

Réglage du faisceau direct. — Tout d'abord un réglage préalable du faisceau direct est fait de telle façon qu'il coupe l'axe de rotation du porte-cristal (celui qui permet de régler l'angle de réflexion) et qu'il soit le plus horizontal possible.

Dans ce but, à la place du cristal, est placé un fil tendu le long de cet axe et le faisceau est centré par rapport à l'ombre du fil portée sur l'écran. On peut ainsi garantir que le faisceau coupe l'axe à 1/100 de millimètre près, tout au moins pour la tension de réglage.

Il est le plus souvent nécessaire de relever le faisceau pour qu'il soit horizontal à l'aide d'une petite bobine magnétique placée après les diaphragmes d'anode et du condenseur, mais le déplacement nécessaire (une dizaine de minutes d'angle) est toujours si petit, que la forme du faisceau n'est pratiquement pas changée malgré un défaut de centrage de la bobine, difficile à éviter. Ce déplacement peut d'ailleurs être négligé sans qu'il s'ensuive une variation appréciable des intensités diffusées.

Dimensions du faisceau. Divergence. — Les distances diaphragme d'anode-lentille du condenseur magnétique et lentille-écran, respectivement de 130 mm et 480 mm, garantissent un faisceau quasiment parallèle quand on le focalise sur cet écran.

Par exemple, pour un diaphragme d'anode de 0,08 mm de diamètre et un diaphragme dans le condenseur de 0,15 mm, on trouve (fig. 1), en considérant la lentille magnétique comme suffisamment mince pour pouvoir appliquer les relations simples de conjugaison objet-image de l'optique géométrique : pour largeur du faisceau sur l'écran : 0,3 mm, c'est-à-dire sur le cristal une largeur au maximum de 0,2 mm et une divergence de 1 minute de part et d'autre de l'axe moyen du faisceau.

La largeur du faisceau a été mesurée à l'aide du cylindre de Faraday en utilisant une fente très fine, 4/100 à 7/100 mm, c'est-à-dire couvrant un angle, mesuré à partir de l'axe de rotation du porte-cristal, de 1 minute à 1 minute et demie. Des mesures ont été faites aussi au niveau du porte-cristal. L'accord est bon avec les dimensions données ci-dessus par le calcul.

Ces mesures ont aussi permis de définir correctement l'intensité devant passer dans le circuit de la lentille magnétique pour obtenir la meilleure focalisation possible, l'observation visuelle ne donnant pas toujours des résultats concordants. Un contrôle de cette intensité à 1 p. 100 a été trouvé largement suffisant.

Stabilité et contrôle de la haute tension. — En ce qui concerne la stabilité de la haute tension elle est assurée à 1 p. 100 près par un régulateur de tension placé sur le circuit d'entrée du transformateur haute tension. Le réglage fait après $3/4$ d'heure de fonctionnement de la cathode froide n'est pratiquement jamais à refaire pour une série de mesures de quelques heures.

La valeur de la haute tension est donnée par un voltmètre fourni et gradué par le constructeur du diffractomètre.

Il est placé en dérivation sur la partie terminale d'une résistance de 100 M Ω elle-même reliée à son autre extrémité à la haute tension. La sensibilité est le $1/4$ de kilovolt.

Mais si ce montage s'est avéré le plus souvent satisfaisant, il est parfois capricieux, sans doute à cause de mauvais contacts ou de variations de la résistance (des erreurs de plus de 15 p. 100 ont pu être remarquées).

Aussi, pour plus de sûreté, la méthode suivante, permise par le montage quel que soit l'encombrement du cristal, était utilisée. Dans la petite bobine génératrice de champ magnétique placée avant le cristal on fait passer une intensité suffisante pour dévier, dans un plan horizontal, le faisceau d'électrons. Le cylindre de Faraday permet de trouver la nouvelle position du faisceau à une demi-minute près. Donc, théoriquement, à condition de déplacer le faisceau d'un angle assez grand, on peut déceler une variation infime du réglage de la tension. Mais malheureusement, à cause de la construction assez sommaire de la bobine déviatrice, le faisceau dévié est élargi et on n'a pas intérêt à trop le déplacer. Des résultats satisfaisants sont donnés pour une déviation allant jusqu'à 2° (élargissement 3 p. 100), déviation qui est malgré tout suffisante, et on peut se contenter de mesurer l'intensité passant dans la bobine à $1/2$ p. 100 pour contrôler finalement V à mieux de 1 p. 100.

Pour mesurer la tension accélératrice en valeur absolue, c'est-à-dire λ , je n'ai pas voulu retenir les résultats obtenus par réflexion sur les monocristaux d'aluminium à cause de l'erreur due à la réfraction. La méthode utilisée est celle préconisée par Trillat (39). Le calcul a été fait à partir de la formule $\lambda = 2d \sin \theta$, où d est pris dans les tables de constantes et θ est trouvé en mesurant, à l'aide du cylindre de Faraday, à 1 minute près, le diamètre angulaire de quelques anneaux (4), du diagramme de diffraction donné par transmission par de la poudre d'oxyde de zinc. Ces mesures ont été faites pour trois tensions. La précision est très bonne car il est facile de placer la poudre, en utilisant un porte-cristal approprié, sur l'axe de rotation de ce porte-cristal, donc aussi du cylindre de Faraday, avec une erreur inférieure à $2/10 \text{ mm} = \Delta L$.

Les mesures faites sont uniquement des mesures d'angles et on peut

estimer l'erreur sur θ correspondant à ce ΔL , en mesurant sans grande précision la distance L de l'axe au plan des anneaux :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = \frac{\Delta L}{L} = \frac{0,2}{180} = \frac{1}{900}.$$

A cette erreur il faut ajouter celle faite sur la mesure de (4θ) . Finalement l'angle θ est déterminé à 3 ou 5 millièmes près.

On peut ainsi trouver la tension en valeur absolue avec une erreur $< \frac{1}{100}$.

La concordance des résultats pour 4 anneaux distincts indique d'ailleurs, d'une part que cette erreur est sûrement inférieure et, d'autre part, que la tension peut rester stable pendant un temps assez long (2 heures : temps nécessaire aux mesures permettant de déterminer (4θ) pour 4 anneaux différents).

TABLEAU I

Étalonnage de la haute tension.

Anneaux	$\lambda_1 \text{ \AA}$	$\lambda_2 \text{ \AA}$	$\lambda_3 \text{ \AA}$
1010.	0,0737	0,0648	0,0582
1011.	0,0741	0,0645	0,0577
1012.	0,0743	0,0653	0,0583
1120.	0,0744	0,0645	0,0578
Moyennes	0,0741	0,0648	0,0580
V kV	26,7	34,4	42,8
α'	124'30"	157'	183'30"

De plus, le contrôle de la tension, signalé plus haut à l'aide de la bobine déviatrice, était fait chaque fois, ce qui donne finalement l'étalonnage $V(\alpha')$ de la tension en valeur absolue à partir de la mesure de l'angle de déviation du faisceau direct.

Intensité du faisceau direct. — Par contre, en ce qui concerne l'intensité du faisceau électronique, de nombreuses et importantes variations sont à signaler. L'intensité totale du faisceau à la sortie de la cathode froide varie, elle, le plus souvent très régulièrement. Après 1 heure de fonctionnement, on peut considérer que cette intensité

baisse, proportionnellement au temps, de 1 p. 100 par heure environ. Ceci est inhérent au type de cathode utilisé. La pression, dans la chambre où les ions sont formés, s'améliore continuellement et donc le débit d'ions diminue légèrement.

Mais l'intensité du faisceau arrivant sur le cristal subit, elle, des fluctuations importantes et c'est justement cette intensité qu'il faut connaître pour pouvoir comparer entre elles les mesures de faisceau diffusé.

Aussi il est indispensable de faire un contrôle continu de l'intensité incidente. Cela est rendu possible par la petite bobine placée avant le cristal qui permet de dévier le faisceau sur un récepteur R relié à un galvanomètre d'une sensibilité de $2,7 \cdot 10^{-11}$ A par millimètre.

Entre chaque mesure, qu'il s'agisse de celles relatives au faisceau direct ou à un faisceau diffracté quelconque, le faisceau d'électrons est envoyé sur le récepteur R. La période du galvanomètre, 5 secondes, est suffisamment courte pour que le temps de déplacement du spot soit toujours plus petit que celui qu'il faut de toute façon pour se préparer à une nouvelle mesure (rotation du cylindre de Faraday ou même du cristal) et l'intensité du faisceau direct est ainsi chaque fois connue sans qu'il s'ensuive une perturbation quelconque ou un allongement des mesures à effectuer.

On peut donc ramener toutes les intensités mesurées, à une même intensité du faisceau direct en faisant une règle de trois. Mais il ne faut pas en abuser car, pour un intervalle de variation trop grand, cette règle de trois n'est certainement pas justifiée. Tous les résultats que je donne, rapportés à une règle de trois, sont obtenus par des mesures faites pour un déplacement du spot du galvanomètre dans l'intervalle de 35-65 mm (soit comme intensité 0,945 à $1,75 \cdot 10^{-9}$ A), intervalle pour lequel la règle de trois est légitime. Pour le vérifier un même spot a été étudié pour les intensités extrêmes et celles autour de la moyenne.

La figure 9 montre le résultat obtenu. Aucune variation systématique n'apparaît.

Intensités diffusées. — Deux sortes de mesures d'intensité diffusée ont été faites presque toutes pour la même tension d'accélération ($35,0 \pm 0,3$ kV).

Dans une première série, le cristal est laissé fixe dans la position donnant une réflexion sélective de Bragg, le plan d'incidence étant horizontal. Le faisceau diffracté est mesuré par déplacement du cylindre de Faraday dans ce plan d'incidence, dans un angle d'environ 40° (80 minutes avant le maximum de la réflexion sélective et $2050'$ après). Cet intervalle angulaire est choisi toujours plus grand que le double de l'angle de réflexion sélective minimum relatif aux plans réticulaires étudiés.

Ces mesures ont été faites avec deux cristaux différents : l'un pour

lequel la surface du cristal fait quelques minutes d'angle avec les plans réticulaires (111) ($4' \pm 2'$), l'autre pour lequel les plans (110) font ($45' \pm 2'$) avec la surface du cristal. Aussi, respectivement, les réflexions sélectives (222), (333), (444), (555) et (440) et (660) ont-elles été étudiées et toutes aux trois températures (20° C, 230° C, 320° C). Pour cette série la fente du cylindre de Faraday est prise relativement fine (elle couvre 1' à 2' d'angle), pour pouvoir étudier la forme du spot de Bragg.

Dans une deuxième série, faite jusqu'à maintenant avec le deuxième

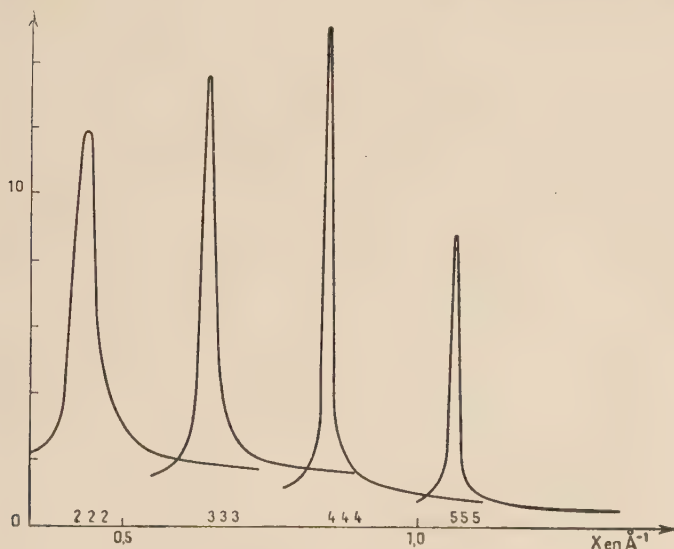


Fig. 5. — Courbes d'intensité pour 4 réflexions sélectives et un même cristal en unité arbitraire.

La courbe (555) représente assez bien la courbe d'intensité du faisceau direct à un facteur $\simeq 3 \cdot 10^3$ près sur l'axe des ordonnées.

cristal seulement, celui-ci est d'abord placé en position de réflexion sélective. Le cylindre de Faraday est orienté pour recevoir le maximum de l'intensité diffusée (sa fente a pour largeur celle du faisceau direct à cette distance du cristal). Ensuite, pour une nouvelle mesure, le cristal est tourné dans un sens ou dans l'autre de 1', 2', 3', ... et le cylindre de l'angle double et ainsi de suite jusqu'à la réflexion sélective d'ordre suivant et au-delà.

Dans un cas comme dans l'autre, la position correcte du cristal donnant le maximum de l'intensité pour la réflexion sélective étudiée est cherchée, d'abord, par un réglage préliminaire utilisant l'écran fluorescent et la possibilité offerte par l'appareil d'obtenir des réflexions

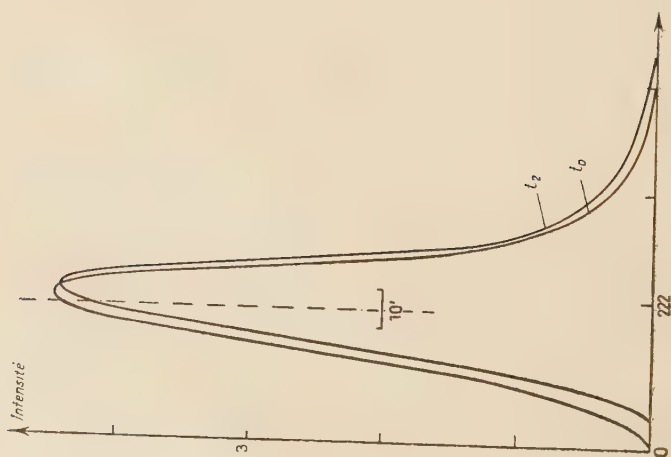


Fig. 6. — Courbes d'intensité, fond continu enlevé, pour une même réflexion sélective aux deux températures t_0 et t_2 . L'axe à mi-hauteur de la courbe t_0 est figuré pour bien montrer la dissymétrie.

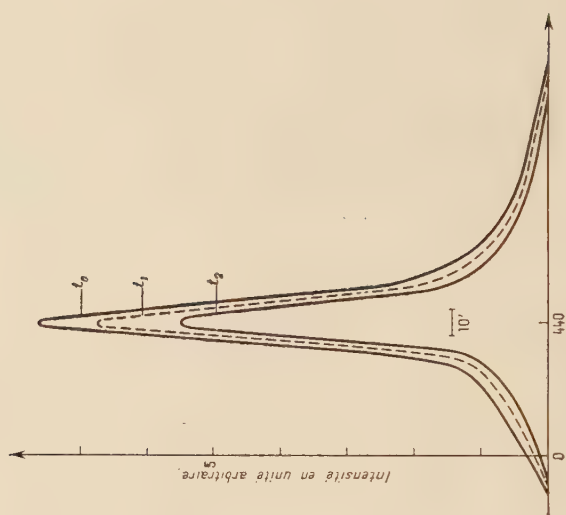


Fig. 7. — Courbes d'intensité, fond continu enlevé, pour une même réflexion sélective et les 3 températures d'expérience.

pour deux positions du cristal à peu près à 180° l'une de l'autre, à gauche et à droite du faisceau direct. Mais ce réglage optique doit être toujours complété en cherchant, par tâtonnements, la position azimutale et l'angle de Bragg donnant le maximum d'intensité par des mesures

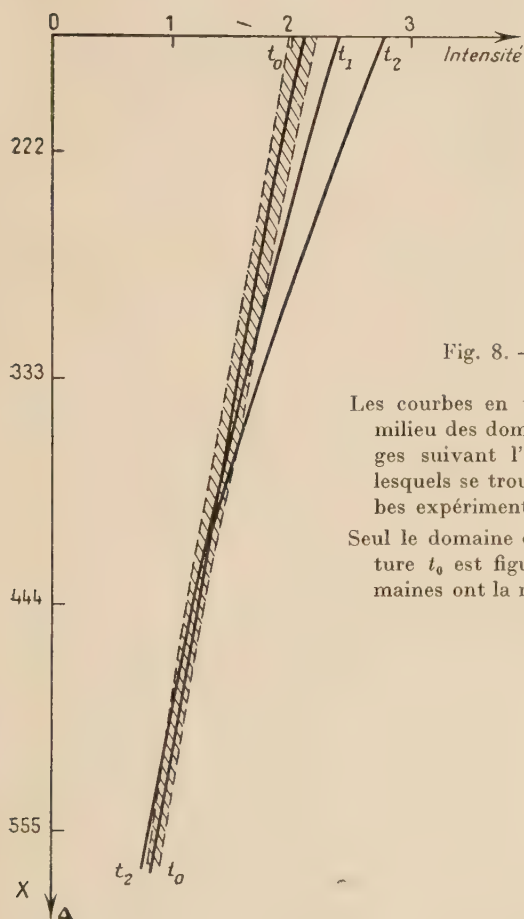


Fig. 8. — Fond continu.

Les courbes en trait plein sont les lignes milieu des domaines, plus ou moins larges suivant l'angle de diffusion, dans lesquels se trouvent les nombreuses courbes expérimentales.

Seul le domaine des courbes à la température t_0 est figuré. Les deux autres domaines ont la même largeur que celui-ci.

à l'aide du cylindre de Faraday. Ces deux dernières rotations peuvent toutes deux être faites à 1 minute près. Le temps mis pour ce dernier réglage exige parfois un bombardement du cristal par le faisceau électronique pendant plusieurs dizaines de minutes mais il suffit, afin d'avoir pour les mesures ultérieures une surface non contaminée, de communiquer une translation au cristal parallèlement à sa surface

et perpendiculairement au faisceau direct, ce qui ne change pas le réglage angulaire, l'axe de cette translation étant très bien défini mécaniquement.

La durée totale de toutes les mesures faites pour une réflexion sélective de la première série signalée ci-dessus est d'une vingtaine de minutes.

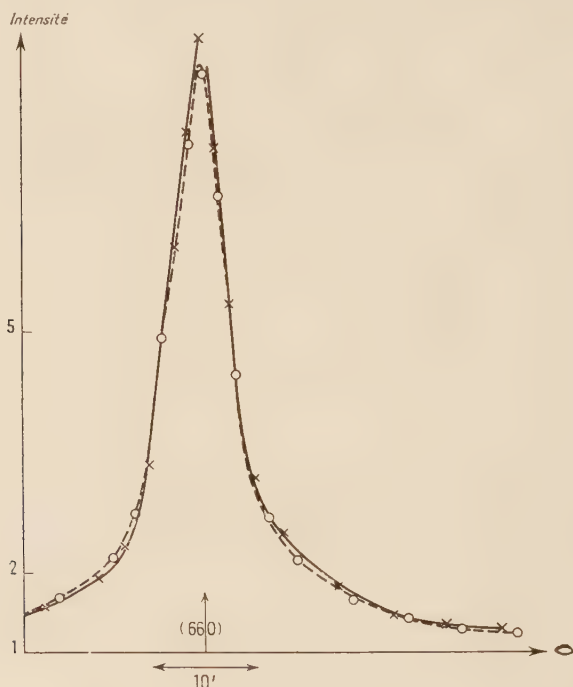


Fig. 9. — Courbes d'intensité pour une même réflexion sélective obtenues pour des intensités incidentes très différentes :

$1,9 \cdot 10^{-8}$ A courbe — x — x —
 $1,0 \cdot 10^{-9}$ A courbe o o

Ce n'est évidemment pas le temps pendant lequel le cristal est bombardé par le faisceau d'électrons. La durée d'une mesure est, en général, 10 secondes et c'est pendant ce temps que le cristal est atteint. Le fait de porter le cristal à 200°C pendant quelques 10 minutes avant toute mesure, ou tout simplement de commencer les mesures par cette température, permet d'utiliser la même portion du cristal pour vingt ou même trente tels pointés sans qu'une trace de souillure apparaisse ou que l'intensité en un point varie de façon appréciable.

Des mesures croisées permettent aussi d'affirmer que le fait d'élever la température du cristal d'aluminium jusqu'à 400° C sous une pression de 2 à $1 \cdot 10^{-5}$ mm de Hg n'augmente absolument pas la couche d'oxyde qui, obligatoirement, se forme entre le moment où le cristal est sorti du bain électrolytique et celui où il est mis sous vide dans l'appareil.

Par contre, si la température dépasse 450° C, une couche se forme qui diminue considérablement l'intensité des réflexions sélectives et augmente très légèrement celle du fond continu. Ce peut être là un moyen d'étudier l'épaisseur de la couche formée mais aucune étude systématique n'a encore été tentée.

CHAPITRE IV

Interprétation des résultats des mesures.

Ayant pour dessein d'étudier l'influence de l'agitation thermique des atomes sur la diffusion des électrons, je montrerai dans une première partie ce que mes résultats permettent d'affirmer à ce sujet. Ils apportent à la théorie dynamique de la diffraction une confirmation importante en ce qui concerne les réflexions sélectives.

Dans une deuxième partie, j'utiliserai ces mêmes résultats pour prendre position dans le débat, depuis longtemps ouvert mais encore bien controversé, sur la symétrie ou la non-symétrie des spots de Bragg, et discuter de leur largeur et de la valeur du potentiel interne telle qu'elle peut être trouvée par le procédé de la diffraction électronique. La théorie dynamique permet encore de mieux interpréter les résultats et, de plus, la différence énorme signalée par Beeching (2), entre les largeurs expérimentales et celles prévues par cette théorie, ne semble pas devoir être retenue.

Influence de l'agitation thermique. Intensités sélectivement réfléchies.

— 1) L'agitation thermique des atomes diminue les intensités sélectivement réfléchies. Mais si l'on peut sans ambiguïté définir le facteur de Debye-Waller $\exp(-BX^2)$, cf. p. 394, affaiblissant le facteur de diffusion de l'atome à cause du mouvement continu de celui-ci, suivant que l'une ou l'autre des théories cinématiques ou dynamiques est applicable, les intensités sélectivement réfléchies varient, avec la température, de façons très différentes l'une de l'autre.

D'après la première, l'intensité est proportionnelle au carré du facteur de structure atomique et donc le facteur d'affaiblissement est $\exp(-2BX^2)$. D'après la seconde, l'intensité est proportionnelle au

facteur de structure et le facteur d'affaiblissement doit donc être $\exp(-BX^2)$.

J'ai déterminé de la façon suivante la loi de variation de ces intensités avec la température.

Les courbes (Ex. fig. 7) donnant l'intensité d'un spot de Bragg, fond continu enlevé, sont tracées pour un même spot aux trois températures que je désignerai maintenant par :

$$t_0 = 20^\circ \text{C}; \quad t_1 = 230^\circ \text{C}; \quad t_2 = 320^\circ \text{C}.$$

Elles limitent, avec l'axe des abscisses, une aire qui est proportionnelle à l'intensité du spot correspondant, soit respectivement : S_0 , S_1 et S_2 .

Or le facteur d'affaiblissement de température D_t est tel que, I_t étant l'intensité à la température t et I_a celle que l'on aurait théoriquement dans les mêmes conditions avec le même cristal, l'agitation thermique éteinte :

$$I_t = I_a D_t.$$

Donc pour un même spot :

$$I_t/D_t = I_a = \text{Cte},$$

et donc :

$$\frac{S_0}{D_0} = \frac{S_1}{D_1} = \frac{S_2}{D_2} = \text{Cte}.$$

Les facteurs de Debye ont été calculés d'après la formule classique de Debye :

$$D = \exp(-BX^2),$$

avec :

$$B = 8\pi^2 \bar{u}_z^2 = \frac{6h^2}{mk\Theta} \left\{ \frac{\Phi(x)}{x} + \frac{1}{4} \right\} \quad (2)$$

$\bar{u}_z^2$ est le déplacement quadratique moyen de l'atome mesuré, à partir de sa position moyenne, perpendiculairement aux plans réfléchissants. h et k sont respectivement les constantes de Planck et de Boltzmann, m la masse de l'atome d'aluminium :

$$\Phi(x) = \frac{1}{x} \int_0^x \frac{\xi}{e\xi - 1} d\xi,$$

a été tabulée par Debye lui-même.

Θ est la température caractéristique de Debye. $x = \Theta/T$, T étant la température absolue.

Certes cette formule utilisée n'est pas rigoureuse, mais elle est généralement considérée comme donnant le résultat cherché avec une bonne approximation dans le cas des cristaux monoatomiques, approximation qu'on peut améliorer en prenant des Θ variables avec la température, ce qui a été fait ici.

Quant au choix à faire parmi les diverses valeurs données dans les

tables pour Θ , suivant les grandeurs physiques prises en compte pour les déterminer, il semble assez logique de retenir celles qui ont été trouvées à partir du phénomène de l'affaiblissement des intensités des rayons X sélectivement réfléchis, similaire à celui envisagé ici pour les électrons.

En ce qui concerne l'aluminium trois groupes de résultats sont à retenir : ceux de James, Brindley et Wood (11), de Owen et Williams (31) et de Walker (42).

Dans le tableau qui suit j'ai indiqué aussi les températures trouvées par Sutton (36) à partir des constantes élastiques :

Températures d'expériences en degrés K	Températures caractéristiques de l'aluminium en degrés K				
	James, Brindley et Wood	Owen et Williams	Walker		Sutton
		Rayons X	Ray. X	Chal. spé.	(C ^t élast.)
100	396				427
293		395	402	380	417
470		383			396
590		375			382

Ces températures, garanties à quelques p. 100 près, diffèrent en fait notablement les unes des autres. Avant de faire un choix, j'ai voulu utiliser un autre procédé de calcul, théoriquement meilleur que celui de Debye, de $B = 8\pi^2 \bar{u}^2$ qui est le suivant : il utilise le spectre des fréquences tel qu'on peut l'obtenir, d'après la théorie de Born (5) à partir des constantes de rappel interatomiques. Pour l'aluminium, justement, ce spectre a été donné par Olmer (30) et Walker (42), tous deux utilisant des mesures de diffusion des rayons X par l'agitation thermique des atomes du cristal.

Le déplacement quadratique moyen peut être exprimé en fonction des énergies moyennes des vibrations normales, ce qui pour un cristal cubique monoatomique de N atomes, de masse m , donne, à la température T :

$$B = \frac{2}{(3N)m} \sum_v \frac{\bar{E}(v)}{v^2},$$

avec :

$$\bar{E}(v) = h\nu \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{e^{h\nu/kT} - 1} \right),$$

ν étant la fréquence d'une vibration normale.

Le spectre des vibrations de densité $\rho(\nu)$ est tel que :

$$3N = \int_0^{\nu_m} \rho(\nu) d\nu,$$

et on obtient pour B :

$$B = \frac{2}{m} \frac{\int_0^{\nu_m} \overline{E}(\nu) \nu^{-2} \rho(\nu) d\nu}{\int_0^{\nu_m} \rho(\nu) d\nu}.$$

Malheureusement, le spectre des vibrations n'est encore donné que pour la température ordinaire. On peut certes, en première approximation, le considérer valable dans un certain intervalle de température, mais plus cet intervalle est grand, plus l'erreur que l'on peut faire, bien difficile à évaluer, est grande.

Le calcul fait pour B à la température ordinaire donne $0,853 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$. En comparant avec les résultats obtenus à l'aide de la formule (2) de Debye, on voit que la température caractéristique qui correspond à cette valeur est 392° , soit assez bien celle donnée par Owen et Williams. Aussi, par la suite, je considérerai que les valeurs de B obtenues à partir des Θ données par Owen et Williams sont certainement les meilleures valeurs à retenir.

J'ai malgré tout fait aussi les calculs en utilisant les températures caractéristiques données par Sutton.

La comparaison des résultats obtenus pour les deux groupes de Θ permet d'apprécier l'erreur que l'on peut faire à cause de l'imprécision sur ces grandeurs.

Le tableau II donne les résultats pour toutes les réflexions étudiées. On y trouve d'abord les surfaces, soit S_i pour la température t_i , limitées par les courbes d'intensité des spots de Bragg. Ce sont les moyennes de 10, parfois même 15 mesures faites pour un spot donné et une température fixe. Ces moyennes sont connues à 3 p. 100 près.

J'ai indiqué ensuite les valeurs des rapports : $K_{(h, k, l)} = \frac{S_i}{D_i}$ calculés avec les Θ d'Owen et Williams et celles de Sutton.

Les nombres correspondants sur une même ligne horizontale devraient être les mêmes. Ils diffèrent, en fait, relativement peu les uns des autres. Il est assez étonnant d'ailleurs de remarquer que si le calcul est fait en prenant une température caractéristique fixe, 395° par exemple, pour le calcul de tous les facteurs de Debye, les nombres K diffèrent encore moins les uns des autres et cette différence devient encore plus petite si les Θ sont prises variables, mais dans le sens inverse du sens habituel (Pour (440) ce n'est pas exact).

Dans la dernière colonne, j'ai indiqué l'écart, en valeur relative, qui sépare le plus petit nombre du plus grand sur une même ligne hori-

TABLEAU II

Réflex. sélect.		t_0	t_1	t_2	$\Delta K/K$ (p. 100)
(222)	Surf. $S_i^{cm^2}$. .	192	179	167	
	$K = \frac{S_i}{D_i} \left\{ \begin{array}{l} \text{O. W. . .} \\ \text{Sutton . .} \end{array} \right.$	224	230	233	+ 3
		221	227	230	+ 4
	$\left(\frac{S}{D_i} \right) = K' \left\{ \begin{array}{l} \text{O. W. . .} \\ \text{Sutton . .} \end{array} \right.$	262	296	320	+ 20
		255	288	308	+ 20
(333)	$S_i^{cm^2}$. .	173	146	128	
	$K_{333} \left\{ \begin{array}{l} \text{O. W. . .} \\ \text{Sutton . .} \end{array} \right.$	247	258	266	+ 7,5
		237	250	261	+ 10
	K'	350	456	550	+ 40
(444)	$S_i^{cm^2}$. .	187	136,5	104	
	$K_{444} \left\{ \begin{array}{l} \text{O. W. . .} \\ \text{Sutton . .} \end{array} \right.$	338	373	372	+ 10
		328	354	359	+ 10
	K'	645	1 020	1 380	+ 60
(555)	$S_i^{cm^2}$. .	79,5	48	inexist.	
	$K_{555} \left\{ \begin{array}{l} \text{O. W. . .} \\ \text{Sutton . .} \end{array} \right.$	208	225	—	+ 8,5
		189	213	—	+ 12
	K'	548	1 060	—	+ de 60

zontale. Le plus petit est, presque toujours, celui correspondant à la température la plus basse (cas où le signe est + devant l'écart relatif).

J'ai aussi calculé $K'_{(h,k,l)} = \frac{S_i}{(D_i)^2}$ pour bien montrer qu'il est absolument impossible de supposer que les intensités des spots décroissent en fonction du carré du facteur de Debye.

Même si l'incertitude sur la valeur de ce facteur est grande, elle n'est certes pas de plusieurs dizaines de pour cent.

Réflex. sélect.		t_0	t_1	t_2	$\Delta K/K$ (p. 100)
(440)	$S_i^{cm^2}$. .	175	129	104	
	$K_{440} \left\{ \begin{array}{l} \text{O. W.} . . \\ \text{Sutton} . . \end{array} \right.$	263	250	245	— 7
		252	244	260	— et + 4
	K'	354	460	650	+ 80
(660)	$S_i^{cm^2}$. .	116	72,8	50,3	
	$K_{660} \left\{ \begin{array}{l} \text{O. W.} . . \\ \text{Sutton} . . \end{array} \right.$	289	323	350	+ 20
		265	271	326	+ 21
	K'	605	2 090	1 224	+ de 100

Les intensités des spots de Bragg obtenues par réflexion décroissent donc sans aucun doute, proportionnellement aux facteurs de Debye. On peut en déduire que ces intensités ne sont pas proportionnelles aux carrés des facteurs de diffusion de l'atome mais certainement à ces facteurs.

Le fait que pour les réflexions (hhh) étudiées, les facteurs de Debye pris en compte semblent trop petits, tend à montrer que les amplitudes des oscillations supposées sont trop importantes. Or elles ont été calculées à l'aide de données intéressant les couches électroniques externes des atomes (diffusion des rayons X). Dans le cas de la diffraction des électrons, la diffusion par les noyaux n'est pas négligeable et est même prépondérante aux grands angles. Comme c'est justement pour ces grands angles de diffusion que l'écart trouvé ici est plus grand on est tenté d'en conclure, qu'en moyenne, les amplitudes des oscillations des noyaux des atomes sont moins grandes que celles des couches électroniques externes. On aurait donc là un moyen de comparer ces amplitudes moyennes quantitativement.

Cette vérification de la théorie dynamique dans le cas de la diffraction électronique par réflexion sur un monocristal n'avait, jusqu'à maintenant, pas encore été faite. Elle suggère la possibilité de déterminer à partir de quelle épaisseur cette théorie dynamique est applicable dans le cas de la diffraction par transmission au travers de feuilles mono- ou polycristallines.

Les études entreprises jusqu'à maintenant à ce sujet, faites unique-

ment sur des feuilles polycristallines, consistent à déterminer les variations relatives d'intensités des anneaux de Debye-Scherrer de différents indices et de les comparer aux facteurs de structure ou à leurs carrés. Mais une difficulté importante est la possibilité d'une orientation privilégiée des petits cristaux constituant la feuille, orientation très fréquente et qui peut fausser tous les résultats comme Pinsker l'a démontré (32), p. 160.

Au contraire, des mesures d'intensités, des spots ou des anneaux de Debye-Scherrer obtenus à différentes températures, doivent permettre qu'il y ait orientation privilégiée ou non, de trouver si ces intensités varient proportionnellement à f ou à f^2 et par suite, *d'affirmer à partir de quelle épaisseur la théorie dynamique est à considérer.*

Intensités diffusées en dehors des directions de réflexion sélective. — La variation, en fonction de la température, de l'intensité diffusée dans des directions nettement distinctes de celles des réflexions sélectives n'a pas encore été étudiée de façon aussi systématique. On peut, à l'aide des résultats, voir malgré tout de quelle façon elle varie et son ordre de grandeur.

Les courbes de fond continu déterminées à partir des mesures faites pour les réflexions sélectives successives (222), (333), (444) et (555) par exemple mises, bout à bout, et cela pour les trois températures d'expérience, présentent l'allure indiquée sur la figure 8. On voit que si pour les angles de diffusion les plus petits, l'intensité du fond continu croît avec la température (pour l'augmentation de température de 300° l'accroissement relatif peut aller jusqu'à 25 p. 100), cet accroissement devient de plus en plus faible et, même, pour des angles de diffusion relativement grands (ceux correspondant à $\frac{\sin \theta}{\lambda} = (0,9 - 1) \text{ \AA}^{-1}$, la variation d'intensité est en sens contraire.

Ce résultat peut sembler paradoxal. On a l'habitude de penser que la diffusion par l'agitation thermique doit être d'autant plus importante que cette agitation est grande, et donc que la température est plus élevée. Mais Laval a montré (17), dans le cas de la diffusion des rayons X, que dans l'expression du pouvoir diffusant, à côté de facteurs croissant avec la température, interviennent toujours les mêmes facteurs d'affaiblissement que pour les réflexions sélectives de Bragg. Ces facteurs, étudiés précédemment, décroissent très vite quand l'amplitude du vecteur de diffusion X augmente et, aux relativement grands angles de diffusion, ils deviennent prépondérants.

Dans le cas de la diffusion des électrons, la théorie de Laval rappelée au chapitre premier, absolument identique à celle développée par ce même auteur pour les rayons X, peut donc expliquer le phénomène signalé ici.

Bien que cette théorie fasse appel à la théorie cinématique, je la

supposerai valable et je vais calculer les intensités diffusées par les ondes d'agitation thermique qu'elle prévoit.

Les expressions des pouvoirs diffusants des divers ordres, données par Laval se simplifient considérablement lorsque le motif cristallin est monoatomique.

Pour un cristal cubique comme l'aluminium le pouvoir diffusant du premier ordre, ϖ_1 , par exemple, a pour expression :

$$\varpi_1(\vec{S}) = \frac{X^2}{\mu} F^2 H^2 \sum_{\gamma=1}^3 \left(\frac{W}{v^2} \right)_{S\gamma} \cos^2 | \vec{X}, \vec{u}_{S\gamma} | ,$$

$\vec{u}_{S\gamma}$ vecteur amplitude de l'onde S_γ .

De plus si le pôle de diffusion $\vec{X}$ est sur un des axes de symétrie [001], [011], [111] du cristal, la sommation sur γ se réduit à un seul terme, les deux ondes transversales ayant leurs vecteurs amplitudes perpendiculaires au vecteur $\vec{X}$:

$$\varpi_1 = \frac{X^2 F^2 H^2}{\mu} \left(\frac{W}{v^2} \right) \text{ onde longitudinale.}$$

En utilisant les résultats de Walker (42), j'ai calculé les pouvoirs diffusants du 1^{er} et du 2^e ordre pour des positions du pôle de diffusion sur les axes [111] et [011] entre deux nœuds du réseau réciproque et pour le cristal à la température ordinaire. D'après les calculs de Walker je peux considérer la somme de ces deux pouvoirs diffusants comme égale pratiquement au

pouvoir diffusant global de l'agitation thermique.

Or, reprenant un calcul fait par Laval (17) pour les rayons X, l'intensité i diffusée dans l'angle solide $d\Omega$ qui revient au pouvoir diffusant ϖ , pour une intensité incidente I , est donnée par :

$$i = I \frac{\bar{\omega}}{\mu_\alpha} \frac{d\Omega}{1 + \frac{\sin a}{\sin b}}.$$

a et b sont les angles faits respectivement par les rayons incidents et réfléchis avec la surface du cristal ; μ_α est le coefficient d'absorption d'un atome du cristal pour la longueur d'onde considérée. Sa grandeur est mal connue, on peut tout juste en indiquer une valeur très approximative (J'ai pris celle qu'on déduit en considérant que le libre parcours moyen dans le cristal, pour des électrons de 35 kV est de 800 Å).

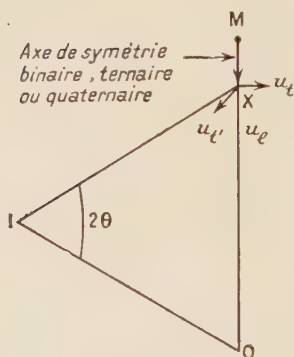


Fig. c.

La figure 10 représente les résultats des calculs théoriques que l'on peut comparer aux valeurs expérimentales pour le pôle de diffusion X sur [110]. Celles-ci sont bien plus grandes que celles-là.

Faut-il attribuer la différence à la diffusion inélastique augmentée de la diffusion par la couche d'oxyde et les irrégularités de surface ?

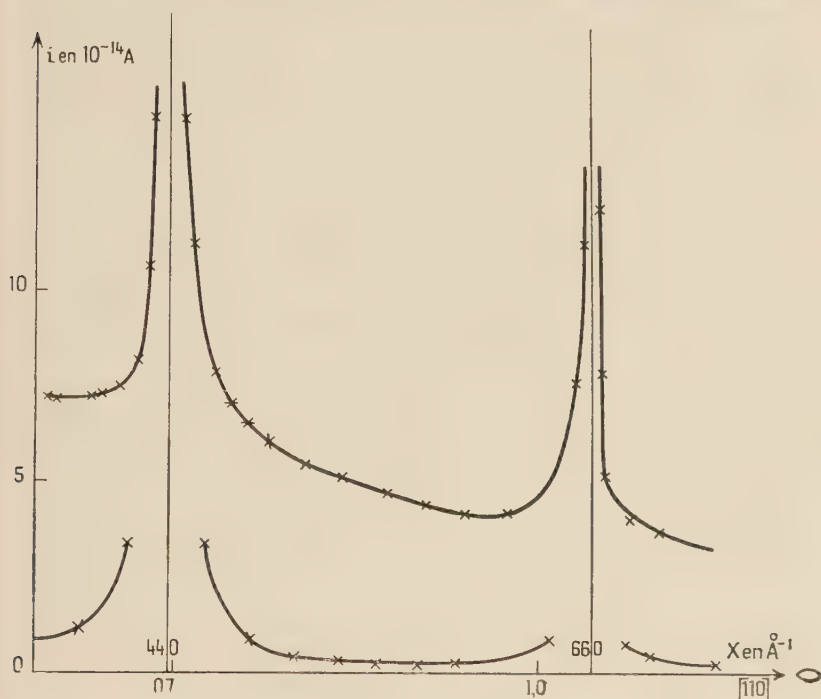


Fig. 10. — Intensité diffusée, en valeur absolue pour une intensité incidente de $1,35 \cdot 10^{-8}$ A.

La courbe du haut est la courbe expérimentale.

La courbe du bas représente l'intensité diffusée par l'agitation thermique du cristal d'après la théorie de Laval.

La diffusion inélastique tombe rapidement à zéro quand l'angle de diffusion augmente et les deux autres diffusions aussi. Aux relativement grands angles de diffusion correspondant aux pôles de la figure 10, les intensités diffusées dues à ces trois causes doivent être très faibles.

D'autre part, je trouve une différence du même ordre de grandeur au voisinage de la réflexion (222), là où l'influence de la température sur l'intensité diffusée a été trouvée importante (accroissement de 25 p. 100 pour une élévation de température de 300° C). Si l'intensité

diffusée par l'agitation thermique n'est que le 1/10 (ou même moins) de l'intensité globale mesurée on voit mal comment interpréter un tel accroissement, la diffusion par effet Compton et par les irrégularités de surface étant indépendante de la température.

L'intensité diffusée par l'agitation thermique est donc plus importante que celle calculée à l'aide de la théorie de Laval.

On peut d'abord incriminer la valeur de μ_α prise en compte. Il est certain (Kirchner (14) l'a vérifié expérimentalement pour le mica), que le coefficient d'absorption dépend du trajet suivi par les ondes électroniques dans le cristal. Quand celui-ci est orienté de telle façon que le chemin suivi soit très éloigné de toute direction de réflexion sélective le coefficient d'absorption doit être plus faible que pour une direction voisine d'une telle réflexion. Mais pour obtenir une correction suffisante, il faudrait faire intervenir des coefficients d'absorption deux à trois fois plus faibles que celui donné ci-dessus, c'est-à-dire des pénétrations deux à trois fois plus grandes que celles admises généralement. Il semble plus logique de penser à une interaction dynamique entre les faisceaux diffusés.

Comme je l'ai rappelé dans le chapitre premier, la théorie de Laval consiste à considérer les ondes électroniques comme réfléchies sélectivement sur les plans d'onde élastique, de même façon que les réflexions sélectives de Bragg le sont par les plans réticulaires du cristal.

On peut calculer, comme l'a fait Darwin (8) pour les rayons X et les plans réticulaires, l'amplitude de l'onde électronique réfléchie par un tel plan d'onde élastique. D'après Darwin, l'amplitude de l'onde diffusée par un plan réticulaire pour une amplitude de l'onde incidente unité est, avec mes notations :

$$q = \frac{N'}{X} F \frac{e^2}{mc^2}.$$

N' est le nombre d'atomes par unité d'aire.

Pour les rayons X et la réflexion (222) de l'aluminium q est inférieur à 10^{-4} . La valeur correspondante, dans le cas des électrons, peut être très près de l'unité comme J. J. Thomson l'a indiqué (37), p. 99.

Pour un plan d'onde élastique, et seulement le pouvoir diffusant du premier ordre, q peut atteindre plusieurs centièmes et même plus du dixième. C'est énorme, et cette grande valeur rend douteux tout calcul fait sur la base de la théorie cinématique.

Donc, dans le cas de la réflexion des électrons sur un bloc monocristallin, comme pour les réflexions sélectives de Bragg, c'est encore la théorie dynamique qui peut expliquer le phénomène de la diffusion par les ondes d'agitation thermique. Mais pour trouver, par cette théorie, l'intensité de la diffusion thermique, le calcul est encore plus complexe que pour les réflexions sélectives. Car si pour ces dernières on peut simplifier,

en considérant que seulement deux ou trois faisceaux ont des intensités importantes, il n'en est plus de même ici.

Dans le cas de la transmission par contre, la théorie de Laval est sûrement valable pourvu que les feuilles poly- ou monocristallines utilisées ne soient pas trop épaisses (quelques centaines d'angströms au maximum). Des mesures d'intensité diffusée sont donc à envisager à l'aide de tels cristaux.

Résultats antérieurs. — Avant de quitter le sujet de l'effet de la température sur la diffusion des électrons, je voudrais parler des résultats de Menzel-Kopf et Menzel (24).

Ces auteurs ont mesuré le plus grand angle de diffusion θ_g pour lequel, à une température donnée et pour un cristal donné, il leur est possible de voir encore distinctement un spot de Bragg sur l'écran fluorescent ou, si la température n'est pas trop élevée ($< 500^\circ \text{C}$), sur la plaque photographique. Ils considèrent qu'au moment où un spot de Bragg n'est plus observable, le rapport entre l'intensité I_r réfléchie sélectivement et l'intensité I_v du fond continu au voisinage de ce spot, a une valeur K liée directement au contraste. Donc, en ne variant pas les conditions d'expérience en ce qui concerne ce contraste (ce qui semble bien difficile à réaliser avec le matériel utilisé) les auteurs supposent, plutôt qu'ils ne démontrent, que les θ_g sont fonction de la température uniquement par l'intermédiaire du facteur de Debye. Ils croient donc possible de remonter aux oscillations harmoniques à partir des $\theta_g(T)$ et ils calculent la valeur moyenne du carré des oscillations atomiques par la formule :

$$\overline{u^2} \cdot \sin^2 \theta_g / 2 = \text{constante.} \quad (4)$$

$\overline{u^2}$ est la moyenne quadratique du déplacement des atomes.

La constante est déterminée à partir de $\overline{u^2}$ calculée pour la température la plus basse et par la formule (2) de Debye.

De cette façon, à partir des valeurs $\theta_g(T)$ trouvées expérimentalement, les auteurs sont en mesure de calculer $\overline{u^2}$ pour chaque température. Ils trouvent ainsi par transmission déjà, mais surtout par réflexion, que les $\overline{u^2}$ sont beaucoup plus grandes que celles prises en compte habituellement (3 à 4 fois plus grandes pour le cuivre et jusqu'à 5 fois plus grandes pour l'argent). Ils en déduisent qu'à la surface, les oscillations sont beaucoup plus amples qu'à l'intérieur même du cristal.

Il me semble que l'on peut déjà difficilement admettre la formule (4). De plus, mes résultats démontrent très clairement que les oscillations à la surface ne peuvent être bien différentes en amplitude des oscillations à l'intérieur du cristal. Tous les calculs des facteurs de Debye ont été faits à partir de résultats intéressant l'intérieur même du cristal

et, malgré tout, ils représentent assez bien le facteur d'affaiblissement des intensités en fonction de la température. Si les oscillations étaient aussi différentes à la surface et dans le sens signalé par Menzel, les facteurs d'affaiblissement seraient beaucoup plus petits, c'est-à-dire qu'ils diminueraient l'intensité beaucoup plus, alors qu'en fait il semble bien que ce soit le contraire.

Largeur des spots. Effet de réfraction. — DISSYMMÉTRIE DES SPOTS. —

Dans cette deuxième partie de l'interprétation des résultats je vais m'intéresser à la forme des spots (largeur, symétrie ou asymétrie) et à leur position par rapport au faisceau direct.

Il est courant au sujet de ce dernier problème de ne considérer que la position des maxima d'intensité pour faire ensuite le calcul permettant de déterminer l'indice de réfraction et donc le potentiel interne.

C'est ce que j'ai fait dans une première étude.

Réfraction. — En ce qui concerne la position des maxima d'intensité, déterminée pour chaque spot au cours d'une même série de mesures avec un même cristal mais à des niveaux différents de celui-ci, la concordance des résultats est bien celle qu'on peut escompter.

Les pointés sont faits, dans le voisinage des maxima, toutes les minutes d'angle et en considérant la tension définie à 1 p. 100 près :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{1}{2} \frac{\Delta V}{V} = \frac{1}{200},$$

ce qui pour (222), (333), (660) et 35 kV donne respectivement des écarts de :

$$\pm 1'; \pm 1'\frac{1}{2}; \pm 2'.$$

Tableau donnant (2ϕ) aux diverses températures.

	t_0	t_1	t_2
(222)	3° 1'5 " 0'5 " 2' " 1'5 " 1'5 " 0 " 1' " 0 " 4' " 3'	3° 3'5 " 4'5 " 2' " 1' " 5'5 " 1' " 1'	3° 2'5 " 3'5 " 4' " 3'5 " 0 " 5' " 2' " 1'5 " 1'
Moyenne. . .	3° 1'5	3° 2'6	3° 2'5

Or voici les résultats pour plusieurs séries de mesures faites après divers réglages du faisceau incident.

Tableau donnant (2φ) aux diverses températures (suite).

	t_0		t_1		t_0	
	7°	$34'$	7°	$34'5$	7°	$35'$
(660)	»	$38'$	»	$35'$	»	$37'$
	»	$37'$	»	$38'5$	»	$38'5$
	»	$35'$	»	$37'$	»	$37'5$
	»	$37'5$	»	$36'5$	»	$40'$
	»	$34'5$	»	$37'$	»	$38'5$
	»	$34'$	»	$35'$	»	$36'5$
	»	$32'$	»	$39'5$	»	$37'$
	»	$35'$				
	»	$36'5$				
	»	$35'5$				
Moyenne. . .	7°	$35'1$	7°	$36'7$	7°	$37'3$

Les écarts sont bien, pour une même température, de l'ordre de grandeur de ceux calculés plus haut.

On peut obtenir une assez bonne moyenne pour la température ordinaire, en utilisant toutes les mesures faites au cours d'une même série et en corrigeant les angles de diffusion déterminés aux températures t_1 et t_2 .

Le coefficient de dilatation linéaire donne, en effet, la correction à faire qui n'est jamais bien grande, de l'ordre de grandeur de l'erreur précédente, mais de signe connu :

TABLEAU III

Réflexion	2θ	$\Delta(2\theta)$ à t_1	$\Delta(2\theta)$ à t_2
222	$190'$	— $1'$	— $1'5$
333	$284'$	— $1'5$	— $2'3$
440	$308'$	— $1'6$	— $2'5$
444	$380'$	— $2'$	— $3'$
660	$462'$	— $2'4$	— $3'8$
555	$474'$	— $2'6$	

J'ai pu ainsi obtenir pour la tension moyenne d'expérience 35 kV, les angles de déviation pour les réflexions de Bragg étudiées. Comme on pouvait s'y attendre, à cause du phénomène de réfraction, ces

angles sont toujours plus petits que ceux calculés pour la tension de 35 kV d'après la formule de réflexion sélective $\sin \theta = \frac{\lambda}{2d}$.

L'écart angulaire permet justement de déterminer le potentiel interne du cristal.

Le calcul peut se faire ainsi : μ étant l'indice de réfraction et (2φ) l'angle de déviation mesuré au lieu de l'angle 2θ de Bragg. $\mu^2 - 1 = \sin^2 \theta - \sin^2 \varphi$ et le potentiel interne g_0 est donné par l'équation approchée :

$$g_0 = \frac{(\mu^2 - 1)h^2}{2em\lambda^2} \left(1 + \frac{h^2}{m^2c^2\lambda^2} \right)^{-\frac{1}{2}}$$

où h , e , m , c ont les significations habituelles.

Les calculs exigent donc la connaissance de la longueur d'onde λ , ce qui est le cas d'après ce qui précède.

TABLEAU IV

Réflexion	$\sin^2 \theta$	$\sin^2 \varphi$	$(\mu^2 - 1) \cdot 10^4$	g_0 (volt)
222	0,00076	0,000696	0,64	2,4
333	0,00171	0,00161	1,0	3,4
444	0,00302	0,00290	1,2	4,1
555	0,00473	0,004615	1,15	3,9
440	0,00201	0,00187	1,4	4,8
660	0,00451	0,00436	1,5	5,1

Deux remarques s'imposent :

La première est que les potentiels de la dernière colonne diffèrent notablement de la valeur du potentiel interne de l'aluminium, jamais trouvée expérimentalement, mais que des calculs théoriques permettent d'obtenir vraisemblablement avec une erreur d'au plus quelques p. 100 (Laschkarew trouve 14,7 V).

La valeur trouvée serait-elle celle de l'alumine ?

Le déplacement angulaire dû au potentiel interne est généralement expliqué par un effet de surface. Mais la couche d'alumine est suffisamment mince ici (au grand maximum 8 Å) pour qu'on puisse hésiter à lui attribuer le déplacement global du spot.

On peut penser à une erreur d'étalonnage de la haute tension. Quel que soit le sens dans lequel on suppose faite une telle erreur, l'interprétation des résultats devient impossible (un ou plusieurs des spots devraient être considérés comme déplacés du côté des grands angles).

Une deuxième remarque au sujet de ces potentiels est la suivante :

Les valeurs trouvées sont d'autant plus petites que l'angle de réflexion est plus petit et semblent tendre vers une limite pour les plus grands angles. Ce résultat est tout à fait conforme à ceux de Yamaguti et Uyeda, entre autres auteurs, mais donnés jusqu'à maintenant seulement pour des cristaux à faces clivées tels que ZnS ou NaCl (40).

L'explication théorique donnée par les auteurs, en très bon accord avec leurs résultats expérimentaux, est basée sur la théorie dynamique de Bethe. Il s'agit d'ailleurs du résultat obtenu par Bethe lui-même mais explicité un peu plus tard par Kikuchi (13) et aussi Uyeda (40).

Il y est démontré que, dans le cas de la réflexion, les spots de Bragg sont déplacés non seulement de la grandeur indiquée plus haut due à la réfraction à la surface $\simeq \frac{\varepsilon_0}{V}$ mais, en plus, de la quantité $\frac{\zeta_0}{k\theta}$ en raison de l'interaction dynamique entre les divers faisceaux diffractés dans l'intérieur même du cristal avec :

$$\zeta_0 = \frac{V_{22}}{2k} + \frac{V_{11}}{2k} \frac{\cos \theta h}{\cos \theta} \simeq \frac{V_{22} + V_{11}}{2k}$$

et :

$$V_{11} = \sum_{g_1 g_2 g_3} \frac{\nu_{g_1 g_2 g_3}^2}{k^2 - k_g^2}$$

$$V_{22} = \sum_{g_1 g_2 g_3} \frac{\nu_{h_1 - g_1, h_2 - g_2, h_3 - g_3}^2}{k^2 - k_g^2},$$

$$k = 2\pi/\lambda_0 \quad \vec{k} \text{ direction et sens du faisceau incident.}$$

$$\vec{k}_g = \vec{k} + 2\pi\vec{g},$$

$\vec{g}$ vecteur du réseau réciproque de composantes :

$$\vec{g}_i \vec{A}_i,$$

V_{11} et V_{22} sont les potentiels dynamiques introduits par Bethe.

θ_h est l'angle fait par le rayon sortant avec la surface du cristal.

Il s'agit donc ici d'un phénomène qui se passe dans l'intérieur même du cristal, donc dans l'aluminium. J'ai pu calculer toutes les grandeurs V_{11} , V_{22} à partir des coefficients (ν_{h_1, h_2, h_3}) du développement en série de Fourier du potentiel dans le cristal d'aluminium, déterminés en supposant l'atome sphérique.

Le tableau V donne les résultats pour les réflexions (h, h, h) obtenues, le plan d'incidence étant confondu avec un plan (1 1 0).

En tenant compte de ce déplacement angulaire on est amené à remplacer φ par $\varphi - \varepsilon$ pour le calcul du potentiel interne et l'on trouve pour celui-ci : 3,4 ; 3,7 ; 4,1 et 3,9 V, respectivement pour les réflexions (222), (333), (444), (555). On peut donc considérer, qu'en ce qui

TABLEAU V

Réflexions	$V_{11} (\text{\AA}^{-2})$	$V_{22} (\text{\AA}^{-2})$	$\varphi_0 (\text{\AA}^{-1})$	$\epsilon = \frac{\zeta_0}{k} \text{ en } ^\circ$
222	0,042	0,024	$3,36 \cdot 10^{-4}$	2'2
333	0,023	0,004	$0,15 \cdot 10^{-4}$	0'6
444	0,008	0,001	$0,05 \cdot 10^{-4}$	0'1
555	0,004	0,001	$0,02 \cdot 10^{-4}$	0'1

concerne la position des spots, la théorie dynamique permet une correction satisfaisante.

LARGEUR DES SPOTS. — Je veux maintenant interpréter mes résultats au sujet de la largeur des spots.

Depuis les expériences faites en 1935 par Beeching avec le diamant et Kikuchi avec ZnS il est admis que la théorie dynamique ne prévoit pas correctement le domaine angulaire de la réflexion sélective. La divergence trouvée à l'époque était en effet considérable comme je l'ai déjà indiqué au chapitre premier.

Comme l'a fait Beeching, ce domaine angulaire de la réflexion sélective ne peut être mesuré qu'en tournant le cristal de part et d'autre de la position de la réflexion sélective théorique (compte tenu de la réfraction), le cylindre de Faraday, avec une fente large, étant lui-même déplacé de l'angle correspondant pour recevoir les électrons réfléchis sélectivement.

TABLEAU VI

Réflexions	Largeur du spot à mi-hauteur en minutes	
	Cristal fixe	Cristal déplacé en même temps que le cylindre de Faraday
440	10' 11'30''	11'30'' 13'30'' 13' 14'30''
660	9'30'' 9'	10' 10'30'' 13'30''

J'ai fait encore trop peu de mesures de ce type et seulement pour (440) et (660) pour pouvoir donner un avis catégorique sur ce sujet. Mais il semble bien que la largeur des spots à mi-hauteur est du même ordre de grandeur que ces spots soient obtenus avec le cristal fixe ou avec le cristal tournant. Le tableau VI donne ces largeurs pour (440) et (660). Elles sont peut-être supérieures pour le deuxième type de spot que pour le premier, mais de très peu.

Aussi la comparaison que je vais faire maintenant entre les largeurs expérimentales et les théoriques tend à prouver que celles-ci ne diffèrent pas tellement de celles-là. Peut-être même qu'en faisant un calcul plus rigoureux, en supposant par exemple que dans le cristal il n'y a pas que deux ondes beaucoup plus intenses que les autres mais n (n pouvant être 8 ou 9), les largeurs théoriques se rapprochent-elles davantage des expérimentales. Mais un tel calcul est, sinon difficile, du moins très long à faire et nécessite l'aide de machines électroniques. Je n'ai pu encore le tenter.

Je reviens maintenant aux largeurs des spots trouvés expérimentalement, le cristal étant fixe.

Dans le tableau VII on peut lire les largeurs des spots à leur demi-hauteur et donc voir que ces largeurs sont toujours plus grandes que la largeur à demi-hauteur du faisceau direct qui est $L = 5'$.

Pour expliquer cette différence de largeur on peut penser à divers phénomènes. Tout d'abord une divergence du faisceau incident. D'après ce que j'ai dit à ce sujet sur les dispositions des diaphragmes on peut pratiquement en tenir compte en ajoutant au maximum l' à $L = 5'$ du faisceau direct.

TABLEAU VII

Réflexions	Largeur à mi-hauteur	τ demi-largeur d'après la théorie dynamique	$\psi(0,6 \theta_{111})$	$2\tau + \psi + L$
(222)	20'5	5'0	4'8	20'8
(333)	11'4	2'0	2'0	12'0
(444)	8'9	0'8	1'1	8'7
(555)	6'5	0'5	0'7	7'7

En ce qui concerne un défaut d'homogénéité du faisceau en énergie, si on peut invoquer une différence de tension accélératrice de ± 1 p. 100 pour diverses courbes d'intensités obtenues à des instants différents, pour les pointés relatifs à une même courbe, les oscillations de tension à incriminer sont celles dues au système redresseur ; la grande capacité

de 0,1 μF nous assure une tension à 1 p. 1 000 et l'élargissement correspondant est donc négligeable ($1'/4$). D'autre part, une étude faite par Möllenstedt et Dücker (27), sur l'homogénéité du faisceau obtenu à l'aide d'une cathode du type utilisé ici, permet d'affirmer qu'un défaut d'homogénéité aussi important que celui qu'il faudrait invoquer ne peut être attribué au mode d'obtention du faisceau.

Pour expliquer la différence de largeur j'ai retenu l'hypothèse de Raether signalée ci-dessus au sujet de l'ondulation de la surface. Si l'on suppose un faisceau incident bien parallèle, par réfraction sur une telle surface, on obtient un faisceau d'ouverture angulaire non nulle dépendant de cette ondulation même. Pour une inclinaison δ de la surface du cristal par rapport aux plans réticulaires réfléchissants, la réfraction dévie le faisceau incident de :

$$\varepsilon' = (\theta - \varphi) = \frac{g_0}{2V} \left(\frac{1}{\theta + \tan \delta} \right) \text{ cf. chap. premier.}$$

J'ai représenté, tableau VIII, les valeurs prises par $2\varepsilon'$ pour divers δ qui, pour la commodité du calcul, ont été pris multiples entiers ou fractionnaires de (θ_{111} pour 35 kV) et pour $g_0 = 4 \text{ V}$ qui est la valeur trouvée expérimentalement plus haut.

Tableau VIII donnant $2\varepsilon'$ en minutes pour 35 kV et $g_0 = 4 \text{ V}$.

δ en multiple de θ_{111} Réfl.	— 2	— 1	— $\frac{3}{4}$	— $\frac{1}{2}$	0	$\frac{1}{2}$	$\frac{3}{4}$	1	2
(222)		29	23	19	14 $\frac{1}{2}$	11 $\frac{1}{2}$	10 $\frac{1}{2}$	9 $\frac{1}{2}$	7 $\frac{1}{4}$
(333)	29	14 $\frac{1}{2}$	13	11 $\frac{1}{2}$	9 $\frac{1}{2}$	8 $\frac{1}{4}$	7 $\frac{1}{2}$	7 $\frac{1}{4}$	5 $\frac{3}{4}$
(444)	14 $\frac{1}{2}$	9 $\frac{1}{2}$	8 $\frac{3}{4}$	8 $\frac{1}{4}$	7 $\frac{1}{4}$	6 $\frac{1}{4}$	6	5 $\frac{3}{4}$	4 $\frac{3}{4}$
(555)	9 $\frac{1}{2}$	7 $\frac{1}{4}$	6 $\frac{3}{4}$	6 $\frac{1}{4}$	5 $\frac{3}{4}$	5 $\frac{1}{2}$	5	4 $\frac{3}{4}$	4

Dans l'hypothèse d'une ondulation donnée on peut donc trouver, à l'aide du tableau, l'ouverture angulaire du faisceau électronique dans le cristal après une première réfraction. Par exemple, pour $\delta = \frac{3}{4} \theta_{111} = 35'$ il suffit de faire la différence entre les deux nombres des colonnes — $\frac{3}{4}$ et + $\frac{3}{4}$ que l'on trouve sur l'horizontale de la réflexion (h, h, h) étudiée et de diviser par 2.

Pour (333) on trouve, dans cette hypothèse : $\frac{13 - 7 \frac{1}{2}}{2} = 2' \frac{3}{4}$.

Je désigne par ψ ces angles que l'on peut d'ailleurs obtenir pour une valeur quelconque de δ sur des courbes déduites des valeurs du tableau précédent.

D'autre part, d'après la théorie dynamique, il y a réflexion totale pour les rayons d'un faisceau angulaire de $\pm \tau$ autour de la direction de réflexion sélective, avec :

$$\tau = \frac{|V_{12}|}{k^2 \theta} \sqrt{\frac{\cos \theta_h}{\cos \theta}}$$

où :

$$V_{12} = -\varphi_{h_1, h_2, h_3} + \sum_{g_1 g_2 g_3} \frac{(\nu_{h_1 - g_1, h_2 - g_2, h_3 - g_3}) \nu_{g_1 g_2 g_3}}{k^2 - k_g^2}$$

est un des trois potentiels dynamiques définis par Bethe. Les autres lettres ont la signification donnée plus haut.

Done, ou bien l'ondulation est très très faible, $\psi \ll 2\tau$ et l'ouverture angulaire du faisceau arrivant sur la face de sortie après réflexion sélective est $\simeq \psi$, ou bien cette ondulation est suffisante et l'ouverture du faisceau après réflexion est 2τ .

L'effet de réfraction intervient encore à la sortie et donc l'ouverture s'accroît encore de ψ .

Par conséquent la largeur est 2ψ ou $2\tau + \psi$.

La dernière colonne du tableau est la largeur angulaire calculée en supposant δ au maximum, $\pm 6/10$ $\theta_{111} = \pm 30'$, ce qui est l'ordre de grandeur des ondulations observées au microscope électronique sur des surfaces d'aluminium préparées de la même façon qu'ici.

L'accord avec les largeurs expérimentales à la demi-hauteur est assez remarquable, *ce qui semble vérifier à la fois l'hypothèse de Raether et la théorie dynamique.*

Mais cette hypothèse de Raether n'est plus justifiée pour les cristaux à face clivée pour lesquels l'élargissement des spots resterait à expliquer.

On peut encore obtenir un accord aussi remarquable en faisant intervenir un potentiel interne variable.

La conclusion que l'on peut finalement tirer est que l'hypothèse de Raether n'est pas incompatible avec les expériences menées ici et aussi, ce qui est plus important, que *les largeurs prévues par la théorie dynamique ne sont pas si éloignées des grandeurs expérimentales qu'on l'admettait jusqu'à maintenant.*

Dissymétrie des courbes d'intensité. — Je terminerai cette revue des résultats expérimentaux en signalant la dissymétrie légère, mais toujours visible, des courbes d'intensités des réflexions sélectives, surtout aux faibles angles. Ces courbes décroissent à partir du maximum d'un spot plus lentement du côté des petits angles que des grands.

Cette dissymétrie déjà signalée par Beeching et Shinohara n'est pas prévue par la théorie dynamique originale de Bethe. Mais elle a pu être expliquée par Molière (29) au moins qualitativement, à partir.

de cette théorie dynamique en faisant intervenir le coefficient d'absorption.

Ce coefficient d'absorption, dont je n'ai pas tenu compte dans le calcul, à l'aide de la théorie dynamique, des largeurs des spots, doit aussi contribuer à augmenter les demi-largeurs τ données dans le paragraphe précédent. Il doit donc permettre d'expliquer les résultats expérimentaux mieux que l'hypothèse de Raether, car le phénomène d'absorption est à considérer pour tous les cristaux, à face clivée ou non.

CONCLUSION

La diffusion des électrons par l'agitation thermique des atomes d'un cristal est un sujet qui a attiré peu d'auteurs, sans doute à cause des difficultés rencontrées ou prévisibles. On se contente le plus souvent de dire qu'il est similaire à la diffusion thermique des rayons X et donc que les oscillations thermiques doivent, d'une part, diminuer les intensités des spots de Bragg et des anneaux de Debye-Scherrer et, d'autre part, diffuser les ondes électroniques en dehors des directions des réflexions sélectives. Ces oscillations sont donc données comme une des causes de l'intensité du fond continu élevé et, les deux phénomènes rappelés ci-dessus combinés, comme une des raisons pour lesquelles, les spots de Bragg, par exemple, ne sont plus visibles à partir d'un certain angle de réflexion.

Pour apporter des renseignements plus précis, j'ai entrepris la mise au point d'un appareil permettant des mesures absolues des intensités diffusées.

Le récepteur du faisceau d'électrons est un cylindre de Faraday et la mesure est faite à l'aide d'un électromètre de Lindemann employé comme appareil de zéro. On est donc obligé d'opérer point par point pour obtenir l'intensité diffusée dans un domaine donné, ce qui peut faire croire à la nécessité d'un temps considérable par rapport à celui qu'on mettrait en utilisant la méthode photographique. Il n'en est rien. On obtient ici directement, à une règle de trois près, l'intensité en valeur absolue et ceci pour des flux d'électrons pouvant varier de 1 à 100 (et même de 1 à 10^6 si l'on tient compte de la possibilité de mesure du faisceau direct).

Pour obtenir, photométriquement, des résultats comparables, il faudrait des clichés pris avec des temps d'exposition différents sur plusieurs séries de plaques, pour finalement obtenir, au microphotomètre, des résultats moins précis à cause des opérations intermédiaires indispensables et au bout d'un travail aussi long, sinon plus.

Les seuls inconvénients ici sont que, pendant toutes les mesures (plusieurs heures), le maintien de la haute tension est indispensable

— qu'elle doit donc être très stable pendant tout ce temps — et aussi que l'intensité du faisceau incident doit être sinon constante, tout au moins mesurable de façon permanente. Ces deux impératifs ont été respectés comme je l'ai indiqué.

Le vide doit aussi être excellent pour éviter la souillure du cristal, ce qui a nécessité le remplacement de la pompe moléculaire par une pompe à diffusion d'huile de débit beaucoup plus important.

Pour le chauffage du cristal j'ai dû réaliser un petit four suffisamment peu encombrant ($42 \times 40 \times 35$ mm) pour que non seulement les déplacements du porte-cristal ordinaire soient utilisables : deux translations et deux rotations d'axes perpendiculaires, mais aussi une troisième rotation d'axe perpendiculaire aux deux autres, commandée de l'extérieur, l'appareil étant sous vide. Cette troisième rotation s'est avérée indispensable pour maintenir, malgré le chauffage, la normale à la surface du cristal exactement horizontale (une déviation verticale de $5'$, de cet axe, déplace verticalement le spot (555) de 0,1 mm).

D'autre part, l'enroulement chauffant du four est fait de telle façon qu'aucun champ magnétique parasite ne perturbe ni ne déplace le faisceau électronique incident, donc aussi n'importe quel faisceau diffracté puisqu'ils sont encore plus éloignés du four que ne l'est le premier.

A l'aide du diffracteur ainsi modifié j'ai pu étudier les intensités des spots de Bragg pour les réflexions sélectives (222), (333), (444) et (555) ainsi que (440) et (660) de l'aluminium aux trois températures suivantes : 20°C , 230°C et 320°C . Je montre que ces intensités, intensités du fond continu enlevées, décroissent en fonction de la température proportionnellement au facteur de Debye : $\exp. - B (\sin \theta/\lambda)^2$ et non proportionnellement à son carré.

Ce résultat peut être considéré comme en faveur de la théorie dynamique de Bethe, qui prévoit, que l'intensité intégrée d'un spot (h, k, l), est proportionnelle au coefficient ν_{hkl} du développement en série de Fourier du potentiel à l'intérieur du cristal. Il nous suggère aussi une méthode permettant de trouver à partir de quelle épaisseur, en diffraction par transmission, c'est cette théorie dynamique qui est nécessairement à considérer, ce qui apportera un renseignement très important aussi bien au théoricien qu'à l'expérimentateur.

Mais contrairement aux conclusions de la théorie originale de Bethe, indiquant qu'il doit y avoir réflexion totale pour le cristal convenablement orienté (positions du cristal qu'il ne peut être difficile de trouver car le domaine angulaire des réflexions sélectives peut, d'après la théorie, couvrir jusqu'à plusieurs dizaines de minutes), je suis loin de trouver dans un spot donné une intensité de l'ordre de grandeur de celle du faisceau direct. Les intensités des spots s'élèvent seulement jusqu'aux 5 millièmes de l'intensité incidente.

En faisant la correction de température, c'est-à-dire en calculant à l'aide du facteur de Debye l'intensité qui aurait pu être atteinte avec un cristal idéal (supposé d'ailleurs tel dans le calcul de Bethe), dans lequel toute agitation thermique est éteinte, l'intensité prévisible est d'après mes résultats au maximum 15 millièmes de l'intensité incidente.

Certes, en tenant compte du coefficient d'absorption, on a pu démontrer que l'intensité réfléchie est moindre que celle indiquée par Bethe, mais les rares calculs faits jusqu'à maintenant ne prévoyaient pas un affaiblissement aussi important.

En dehors des directions de réflexions sélectives, je prouve que l'intensité diffusée dépend de la température. Aux faibles angles, cette intensité croît avec la température (pour une élévation de température de 300° C cet accroissement peut être de 25 p. 100 au voisinage de la réflexion (222) de l'aluminium). Pour des angles de diffusion plus grands l'accroissement est plus faible et même à partir de la réflexion (444) l'intensité du fond continu décroît quand la température augmente.

Ce dernier résultat est beaucoup moins net que celui pour la variation en sens contraire signalée plus haut (la diminution, même au-delà de la réflexion (555), n'est jamais supérieure à 10 p. 100, ce qui n'est guère plus que l'erreur (± 6 p. 100) faite sur chaque pointé dans cette région de très faible intensité).

Ces variations avec la température des intensités diffusées et aussi leurs valeurs absolues, me permettent d'affirmer que, dans le cas de la réflexion sur un bloc monocristallin, la diffusion par l'agitation thermique ne peut être expliquée qu'en faisant appel à la théorie dynamique.

Je n'ai jamais observé de maxima diffus tels qu'on les trouve dans la diffraction des rayons X. Les spots sont toujours allongés dans la direction de la normale à la surface mais leur allongement est, sans aucun doute, à attribuer à autre chose qu'à un effet thermique.

J'ai utilisé les données précises fournies par mes mesures pour voir à quoi est dû cet allongement.

L'hypothèse de Raether, associée à la théorie dynamique, permet de retrouver assez bien les largeurs expérimentales. Mais d'autres explications sont possibles. Un résultat certain est que les largeurs des spots prévues par la théorie dynamique de Bethe, ne sont pas tellement plus petites que les largeurs trouvées expérimentalement, contrairement aux résultats antérieurs, moins précis. Ceci laisse supposer que la prise en considération du phénomène d'absorption dans les calculs de cette théorie doit apporter une amélioration sensible de la concordance entre la théorie et l'expérience.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) I. ACKERMANN. — *Ann. der Physik*, 1948, **2**, 19.
- (2) R. BEECHING. — *Phil. Mag.*, 1935 [7], **20**, 841.
- (3) H. BETHE. — *Ann. der Physik*, 1928, **87**, 55.
- (4) M. BLACKMANN. — *Proc. Roy. Soc.*, 1939, A **173**, 68.
- (5) M. BORN. — *Rep. Prog. Phys.*, 1942-1943, **9**, 294.
- (6) D. CRIBIER. — *Thèse Paris*, 1956.
- (7) H. CURIEN. — *Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr.*, **75**, 197 et 343.
- (8) C. G. DARWIN. — *Phil. Mag.*, 1914, 675.
- (9) P. DEBYE. — *Ann. der Physik*, 1912, **29**, 279.
- (10) P. A. JACQUET. — *Le polissage électrolytique des surfaces métalliques*. Éditions Métaux, 1948.
- (11) R. W. JAMES, G. W. BRINDLEY et R. G. WOOD. — *Proc. Roy. Soc.*, 1929, A **125**, 401.
- (12) E. JACOBSEN. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 654.
- (13) S. KIKUCHI. — *Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res.*, Tokyo, 1935, **36**, 225.
- (14) F. KIRCHNER. — *Ann. der Physik*, 1932, **13**, 38.
- (15) P. LACOMBE et L. BEAUJARD. — *J. Chim. Phys.*, 1947, **44**, 269.
- (16) J. LAVAL. — *Bull. Soc. franç. Minéral. Cristallogr.*, 1939, **62**, 137.
- (17) J. LAVAL. — *Bull. Soc. franç. Minéral. Cristallogr.*, 1941, **64**, 1.
- (18) J. LAVAL. — a) *C. R.*, Paris, 1954, **238**, 2068.
- (19) J. LAVAL. — b) *Journ. de Physique*, 1954, **15**, 545 et 647.
- (20) J. LAVAL. — *Cours au Collège de France*, 1955 (non publié).
- (21) S. LENNANDER. — *Ark. f. Fysik*, 1954, **8-6**, 551.
- (22) C. H. MACGILLAVRY. — *Physica*, 1940, 's Grav., **7**, 329.
- (23) C. MENZEL-KOPP et E. MENZEL. — *Zeits. Phys.*, 1955, **142**, 241.
- (24) C. MENZEL-KOPP et E. MENZEL. — *Zeits. Phys.*, 1956, **144**, 538.
- (25) P. MERIEL. — *Thèse Paris*, 1955.
- (26) G. MÖLLENSTEDT. — *Ann. der Physik*, 1941, **40**, 39.
- (27) G. MÖLLENSTEDT et H. DUKER. — *Z. Natforsch. A. Dtsch.*, 1953, **8**, 79.
- (28) S. MIYAKE. — *Proc. Phys. math. Soc. Jap.*, 1940, **22**, 666.
- (29) K. MOLIÈRE. — *Ann. der Physik*, 1939, **34**, 461.
- (30) P. OLMER. — *Bull. Soc. franç. Minéral. Cristallogr.*, 1948, **71**, 144.
- (31) E. A. OWEN et R. W. WILLIAMS. — *Proc. Roy. Soc. London*, 1947, A **188**, 509.
- (32) Z. G. PINSKER. — *Electron diffraction*. Traduit du russe. Butterworth Sc. Public., London, 1953.
- (33) H. RAETHER. — *Erg. dèr Ex. Natur.*, 1951.
- (34) K. SHINOHARA. — *Sci. Pap. Inst. phys. chem. Res.*, Tokyo, 1932, **18**, 223.
- (35) J. SKREBOWSKI. — *Proc. Phys. Soc.*, 1948, A **61**, 430.
- (36) P. M. SUTTON. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 816.
- (37) G. P. THOMSON et W. COCHRANE. — *Theory and Practice of Electron Diffraction*. McMillan, London, 1939.
- (38) J. J. TRILLAT. — *J. Phys. Radium*, 1932, **3**, 185.
- (39) J. J. TRILLAT. — *Rev. Gén. Élect.*, 1946, **55**, 307.
- (40) R. UYEDA. — *Proc. phys. math. Soc. Jap.*, 1938, **20**, 280.
- (41) VAN ZANTEN. — *Thèse Université d'Utrecht*, 1945.
- (42) C. B. WALKER. — *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 547.

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

L'exciton.

VU ET APPROUVÉ :

Paris, le 7 mai 1958.

Le Doyen de la Faculté des Sciences,
J. PÉRÈS.

VU ET PERMIS D'IMPRIMER :

Le Recteur de l'Académie de Paris,

JEAN SARRAILH.

